

Stufenkinetik vizinaler Si(001)-Oberflächen unter dem Einfluss hoher Temperatur und Au-Adsorption

Von der Fakultät Physik
der Universität Duisburg-Essen
zur Erlangung des Grades

Doktor der Naturwissenschaften
(Dr. rer. nat.)

genehmigte Dissertation
von

Dipl.-Phys. Pierre Kirschbaum
geboren am 13. August 1984
in Bottrop

Erstgutachter: Prof. Dr. Frank Meyer zu Heringdorf

Zweitgutachter: Priv.-Doz. Dr. Jan-Ingo Flege

Prüfer: Prof. Dr. Hermann Nienhaus

Vorsitzender der Prüfungskommission: Prof. Dr. Ralf Schützhold

Tag der Disputation: 20. Oktober 2016

Tag der Einreichung: 01. Juni 2016

Ich bin mir der Bedeutung dieses Augenblicks nicht bewusst, fühle auch nichts von Siegesfreude, komme mir gar nicht als Sieger vor. Ich bin nur froh, dass ich heroben bin und all diese Strapazen vorläufig ein Ende haben.

Hermann Buhl
Österreichischer Bergsteiger
3. Juli 1953 nach der Erstbesteigung des Nanga Parbat

Hiermit versichere ich, dass ich diese Arbeit selbständig und nur unter Verwendung der angegebenen Hilfsmittel angefertigt habe. Alle wörtlich oder inhaltlich übernommenen Stellen habe ich als solche gekennzeichnet.

Duisburg, 01.06.2016

Kurzfassung

Inhalt dieser Dissertationsschrift ist die Untersuchung der Stufenkinetik auf leicht vizinalen Si(001)-Oberflächen bei sehr hohen Temperaturen mittels LEEM. Zunächst wird der lagenweise Zerfall isolierter Si-Hügel und Sattelpunkte in deren Umgebung detailliert analysiert. Aufgrund des Gibbs-Thomson-Effekts zerfällt ein solcher Hügel für Temperaturen zwischen 850°C und 1060°C immer schneller als der Sattel. In diesem Temperaturbereich können Hügel folglich vollständig von der Oberfläche entfernt werden. Für höhere Temperaturen werden die Stufenfluktuationen so groß, dass der Gibbs-Thomson-Effekt überall gleich stark wirkt; Sattel und Hügel zerfallen entsprechend gleich schnell. Weiterhin kann gezeigt werden, dass die Zerfallsrate der obersten Hügellage nicht konstant ist, sondern jede zweite Lage schneller zerfällt. Dieser als "Pairing" bezeichnete Effekt beruht auf einer Brechung der Symmetrie. Detaillierte Untersuchungen machen deutlich, dass auf der selben Probe der Pairing-Effekt bei allen Hügeln gleich groß ist und immer derselbe Terrassentyp bevorzugt zerfällt. Beides variiert jedoch für unterschiedliche Proben. Die Brechung der Symmetrie muss daher in einer makroskopischen Verspannung der Probe begründet sein. Dadurch wird schließlich der Zerfall eines der beiden Terrassentypen bevorzugt ablaufen.

Darüber hinaus wird gezeigt, dass die Deposition von Gold auf der Oberfläche zu einer Beschleunigung des Hügelzerfalls führt. Gold und Silizium bilden ein Oberflächeneutektikum, wodurch der Schmelzpunkt lokal herabgesetzt wird. Dies geschieht zunächst an den Stufenkanten, was eine deutlich erhöhte Stufenfluktuation und den beschleunigten Hügelzerfall zur Folge hat. Eine noch höhere Goldbedeckung führt schließlich auch zum Aufräumen der Terrassen, sodass dieser Effekt im Wesentlichen wie eine Reduktion der kritischen Aufräumungstemperatur wirkt. Auf unverspannten, gleichmäßig gestuften Oberflächen führt dieser Anlagerungsmechanismus darüber hinaus zu zwei goldinduzierten Domänendominanzen. So wird gezeigt, dass die Adsorption von Gold zunächst zu einer deutlichen Verbreiterung des Terrassentyps führt, auf dem die Dimerreihen parallel zu den Stufen verlaufen. Weiteres Gold kehrt diese Dominanzsituation um, sodass kurz vor dem Aufräumungsphasenübergang der Terrassentyp dominiert, auf dem die Dimerreihen gerade senkrecht zu den Stufen liegen. Erklärt wird dieser Effekt durch eine Minimierung der veränderten Energie des Spannungsfeldes. Eine extrinsische Verspannung verändert die Situation und treibt das System zunächst in die Dominanz, des bereits ohne Gold vorherrschenden Terrassentyps.

Abstract

This dissertation is about the investigation of step kinetics on slightly vicinal Si(001) surfaces at very high temperatures studied by LEEM. First the layer-by-layer decay of isolated Si hills and saddle points in their vicinity is analysed in detail. Due to the Gibbs-Thomson effect, for temperatures between 850°C and 1060°C the decay rate at the hill is always higher than at the saddle. Therefore, in this temperature range it is possible to completely remove such hills from the surface. For higher temperatures the step fluctuations get so strong that the Gibbs-Thomson effect has the same influence everywhere on the sample. As a result, hills and saddles decay equally fast. Moreover, the decay rate of the top terrace is not constant, but every second layer decays faster. This “pairing” effect is caused by a broken symmetry. Detailed investigations show that on the same sample the pairing is always equally strong and that the decay of the same terrace type is always favored. But both differ from sample to sample. Therefore the broken symmetry has to be result from a macroscopic stress in the sample. As a result, the decay of one of these two terrace types is favoured.

Furthermore, the deposition of gold on the surface increases the decay of the hills. Gold and silicon form a kind of surface-eutectic which reduces the melting point locally. First this happens at the step-edges, which leads to a significant increase of the step fluctuations as well as to the acceleration of the decay of the hills. A still higher gold-coverage finally leads to a roughening of the terraces, which means that this effect basically acts like a reduction of the critical roughening temperature. On unstrained samples with uniform stepped surfaces, consequences of this accumulation mechanism are two gold-induced ranges with dominating domains. Adsorption of gold first leads to a significant expansion of the terrace type with dimer rows parallel to the step edges. Further gold-deposition inverts that situation and consequently that terrace type with dimer rows perpendicular to the steps is dominating. The explanation for that effect is a minimization of the changing energy of the overall tension-field. Extrinsic stress changes that situation and initially drives the system to the dominance of the already gold-free predominating terrace type.

Inhaltsverzeichnis

Abkürzungsverzeichnis	9
Einleitung	11
1 Theoretische Grundlagen	13
1.1 Silizium(001)-Oberfläche	13
1.1.1 Oberflächenrekonstruktionen	13
1.1.2 Stufen auf vizinalen Si(001)-Oberflächen	17
1.1.3 Verspannung vizinaler Si(001)-Oberflächen	20
1.1.4 Gold auf Si(001)	21
1.2 Thermodynamische Beschreibung von Stufen	23
1.2.1 Übersicht und Eigenschaften der Energiebeiträge	24
1.2.1.1 Freie Energie einer Stufe	24
1.2.1.2 Stufenentropie	24
1.2.1.3 Kinkenenergie	25
1.2.1.4 Linienspannung	25
1.2.1.5 Stufensteifigkeit	26
1.2.1.6 Chemisches Potential	27
1.2.1.7 Schwoebel-Ehrlich-Barriere	27
1.2.2 Thermisch aktivierte Stufenkinetik: Der Aufrauungsphasenübergang	28
1.2.3 Stufenfluktuationen im Solid-on-Solid-Modell	28
1.2.3.1 Isolierte Einzelstufen	29
1.2.3.2 Stufen-Stufen-Wechselwirkung	30
1.2.4 Geschlossene Einzelstufen: Der Gibbs-Thomson-Effekt . . .	30

1.3	Abbildung mit niederenergetischen Elektronen	32
1.3.1	Elektronenbeugung	33
1.3.2	Ewaldkonstruktion	34
2	Experimenteller Aufbau	37
2.1	Vakuumsystem	37
2.2	LEEM	39
2.2.1	Realraumabbildung	40
2.2.2	Impulsraumabbildung	42
2.2.3	LEEM-Abbildungsmethoden	43
2.2.3.1	Hellfeld-Modus	43
2.2.3.2	Dunkelfeld-Modus	45
2.3	Probenpräparation	46
2.3.1	Silizium Proben	46
2.3.2	Verdampfersystem	47
2.4	Temperaturmessung	47
3	Zerfall isolierter Hügel und Sättel auf Si(001)	51
3.1	Einleitung und Motivation	51
3.2	Entstehung von Hügeln und Sätteln	52
3.2.1	Prinzipieller Mechanismus der Hügelbildung	52
3.2.2	Hügel und Sättel im LEEM	55
3.3	Zerfall der Hügellandschaft	57
3.3.1	Zeitlicher Verlauf des Zerfalls	57
3.3.2	Temperaturabhängigkeit des Zerfalls	59
3.3.3	Vollständiger Zerfall	62
3.3.4	Diffusion vs. Desorption	63
3.4	Asymmetrischer Zerfall eines Hügels	66
3.4.1	Zeitkonstanten des Zerfalls	66
3.4.2	Zerfallsraten	68
3.4.3	Kinetische Instabilität	72
3.4.4	Makroskopische Verspannung	73
3.5	Zusammenfassung und Ausblick	75

4	Gold auf Si(001) bei hohen Temperaturen	77
4.1	Einleitung und Motivation	77
4.2	Deposition von Gold auf Si(001) – Experimentelle Daten	78
4.3	Einfluss der Gold-Adsorption auf den Zerfall isolierter Hügel und Sättel	81
4.3.1	Beschleunigung des Hügelzerfalls	81
4.3.2	Einfluss auf den Sattelzerfall	88
4.3.3	Oberflächeneutektikum und Reduktion der Aufrauungstemperatur	89
4.3.4	Einfluss auf den Pairing-Effekt	92
4.4	Manipulation der Stufenkinetik und Oberflächendomänen	94
4.4.1	Erhöhung der Stufenfluktuationen	94
4.4.2	Dominanz einzelner Terrassentypen	97
4.4.3	Einfluss extrinsischer Verspannungen	108
4.4.4	Temperatur- und Bedeckungsabhängigkeit	111
4.5	Zusammenfassung und Ausblick	114
	Literaturverzeichnis	118
	Danksagung	131
	Anhang	132
A1	Konstruktion und Aufbau einer neuen LEEM-Probenbühne	132
A1.1	Einleitung und Motivation	133
A1.2	Technische Anforderungen und Konstruktion	134
A1.3	Aufbau, Optimierung und erster Testbetrieb	138
A1.4	Zusammenfassung und Ausblick	140
A1.5	Technische Zeichnungen der neu konstruierten Komponenten	141
A2	Liste der Konferenzbeiträge	149
A3	Publikationen	151

Abkürzungsverzeichnis

μ -LEED	Mikrometer-selektive Niederenergie Elektronenbeugung
AES	Augerelektronenspektroskopie
Au	Gold
EELS	Elektronenenergieverlustspektroskopie
LEED	Niederenergetische Elektronenbeugung
LEEM	Niederenergetisches Elektronenmikroskop
MCP	Vielkanalplatte
MEIS	Mittelenenergetische Ionenspektroskopie
ML	Monolagen
PEEM	Photoemissionselektronenmikroskop
REM	Reflexions Elektronen Mikroskopie
Si	Silizium
SOS	Solid-on-Solid
SPA-LEED	Spotprofil-Analyse Niederenergie Elektronenbeugung
SPE-LEEM	Spektroskopisches Niederenergieelektronenmikroskop
STM	Rastertunnelmikroskopie
UHV	Ultrahochvakuum
XPS	Röntgenphotoelektronenspektroskopie

Einleitung

Fast die gesamte Halbleitertechnologie basiert auf Si(001) als Ausgangsfläche, sodass diese Oberfläche bereits seit Jahrzehnten eine der technologisch relevantesten überhaupt ist. Nach der Entwicklung des LEEMs Ende der 1980er Jahre stellte aus diesem Grund Si(001) ebenfalls die Oberfläche der Wahl für experimentelle Untersuchungen dar. Der starke Kontrast im Dunkelfeld-LEEM eignet sich optimal, um Si(001) detailliert zu analysieren, sodass zu der damaligen Zeit beinahe wöchentlich neue Ergebnisse dieser LEEM-Untersuchungen veröffentlicht wurden. Auf diese Weise konnten in den 1990er Jahren fundamentale theoretische Konzepte zum Verhalten von Stufen, Terrassen und Rekonstruktionen entwickelt werden. Heute, ein Vierteljahrhundert später, haben sich die Auflösung und insbesondere die Auflösungsstabilität bei hohen Temperaturen von modernen Mikroskopen so verbessert, dass es möglich geworden ist, auch komplexere Systeme, wie Hügel oder Sättel im Hochtemperaturbereich, *in-situ* im Detail analysieren zu können. Die in der vorliegenden Arbeit gezeigten Experimente schöpfen diese neuen Möglichkeiten aus und bewegen sich an der Grenze des heute methodisch Machbaren. So kann beispielsweise in Kapitel 3 die Beobachtung und Analyse des Zerfall atomarer Lagen bei Temperaturen von bis zu 1200°C in Echtzeit gezeigt werden. Auf diese Weise ist es gelungen, die Hochtemperatur-Stufenkinetik mit Hilfe einzelner Energie- und Verspannungsbeiträge der Oberfläche qualitativ zu erklären, was insbesondere für nur leicht fehlgeneigte Oberflächen, die bereits intrinsisch aufrauen, von Interesse ist.

Darüber hinaus werden in dieser Arbeit nicht nur saubere Si(001)-Oberflächen untersucht, sondern es wird auch der Einfluss von Adsorbaten bei hohen Temperaturen analysiert. Die Fragestellung von Adsorbateinflüssen auf Oberflächen geschieht heute zumeist mittels Rastertunnelmikroskopie, welche zwar den Vor-

teil einer deutlich besseren (weil atomaren) Auflösung hat, bei für diese Arbeit relevanten, sehr hohen Temperaturen allerdings schnell an ihre Grenzen stößt. Gerade diese Lücke wird von der hier vorliegenden Arbeit und dem untersuchten Einfluss der Au-Adsorption auf die Stufenkinetik geschlossen. Zwar haben sich bereits zuvor andere Arbeiten mit dem Einfluss von Gold auf die Morphologie der Si(001)-Oberfläche mit Hilfe der Methodik LEEM beschäftigt, dabei ging es allerdings immer direkt um Stufenbündel bzw. stärker fehlgeneigte, facettierte Si-Oberflächen bei deutlich tieferen Temperaturen und nicht explizit um die Kinetik von Einzelstufen. Gerade eine solche goldinduzierte Bewegung der Einzelstufen ist in Kapitel 4 ebenfalls Bestandteil dieser Arbeit.

Kapitel 1

Theoretische Grundlagen

1.1 Silizium(001)-Oberfläche

Silizium (Si) ist ein Element der vierten Hauptgruppe. Seine Valenzelektronen bilden im kristallinen Zustand vier sp^3 -Hybride [1]. Daher kristallisiert Silizium kubisch-flächenzentriert (fcc) in einer Diamantstruktur mit einer Gitterkonstante von 5,43 Å und einem Winkel zwischen den Bindungen von etwa 109° [2]. Im Rahmen dieser Arbeit wird sich mit den Eigenschaften einer Si(001)-Oberfläche beschäftigt. Die verwendete Nomenklatur der Oberflächenorientierung mit den Indizes h, k und l geht auf Miller zurück [3]. Solch eine Oberfläche entsteht durch einen Schnitt quer durch einen Siliziumkristall entlang der (001)-Ebene und beschreibt nach Miller eine Fläche, auf der die [001]-Richtung im Kristall senkrecht steht (siehe Abbildung 1.1). Aufgrund der kubischen Symmetrie ist diese Oberfläche äquivalent zur (100)- oder auch zur (010)-Oberfläche (nach Miller werden diese auch als $\{100\}$ -Oberflächenschar zusammengefasst), was zur Folge hat, dass auch in der Literatur die Bezeichnungen nicht konsistent sind.

1.1.1 Oberflächenrekonstruktionen

Nach einem “frischen” Schnitt durch einen Siliziumkristall zur Erzeugung einer solchen (001)-Oberfläche, besitzen die obersten Atome dieser Oberfläche nur noch zwei Bindungspartner. Die anderen beiden sp^3 -Hybride stehen ungesättigt aus

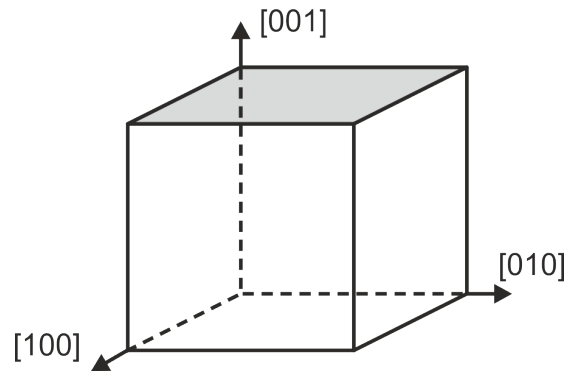


Abbildung 1.1: Kristallrichtungen in einem kubischen Gitter nach Miller [3]. In grau ist die für diese Arbeit relevante (001) -Fläche dargestellt, welche senkrecht auf der $[001]$ Richtung steht.

der Oberfläche hervor und werden als Dangling Bonds bezeichnet [4, 5]. Diese Situation wird in Abbildung 1.2 (a) gezeigt und als “truncated bulk”-Geometrie bezeichnet, weil die Atompositionen auch an der Oberfläche genau denen im Festkörper entsprechen.

Die Konstellation ist energetisch nicht sehr günstig, sodass in Folge dieser Instabilität immer zwei Oberflächenatome eine Bindung untereinander eingehen [8]. Obwohl zunächst ein gewisser Energiebetrag aufgebracht werden muss, um die Atomposition zu verändern, kann auf diese Weise die Oberflächenenergie insgesamt verringert werden [9]. Um die Dangling Bonds abzusättigen, kann dabei zum einen die ursprüngliche Bindungslänge, oder zum anderen der Bindungswinkel verändert werden. Wie in anderen Arbeiten gezeigt werden konnte, ist eine Änderung der Bindungslänge jedoch energetisch deutlich ungünstiger, sodass die Absättigung im Wesentlichen durch eine Änderung des Bindungswinkels von staten geht [10]. Bei dieser Form der Oberflächenrekonstruktion, also der Neuordnung der Oberflächenatome, werden die beschriebenen Bindungen der Atome untereinander als Dimere bezeichnet. Man spricht daher auch von “Dimerisierung” der Oberfläche. In dem in Abbildung 1.2 (b) gezeigten Fall sind diese Dimere in $[1\bar{1}0]$ -Richtung ausgerichtet und symmetrisch rekonstruiert. Als Folge der Dimerisierung ist entsprechend der Nomenklatur nach Wood [11] eine (2×1) -Einheitszelle entstanden, sodass diese Rekonstruktion auch als (2×1) -Struktur bezeichnet wird. Charakteristisch ist auch die Ausbildung von Dimerreihen, die als Konsequenz immer senkrecht auf den Dimeren stehen und in Abbildung 1.2 (b) beispielsweise in $[110]$ -Richtung orientiert sind. Die Unterscheidung von Dimeren (und deren Orientierung) und Dimerreihen (und deren Orientierung) ist für diese

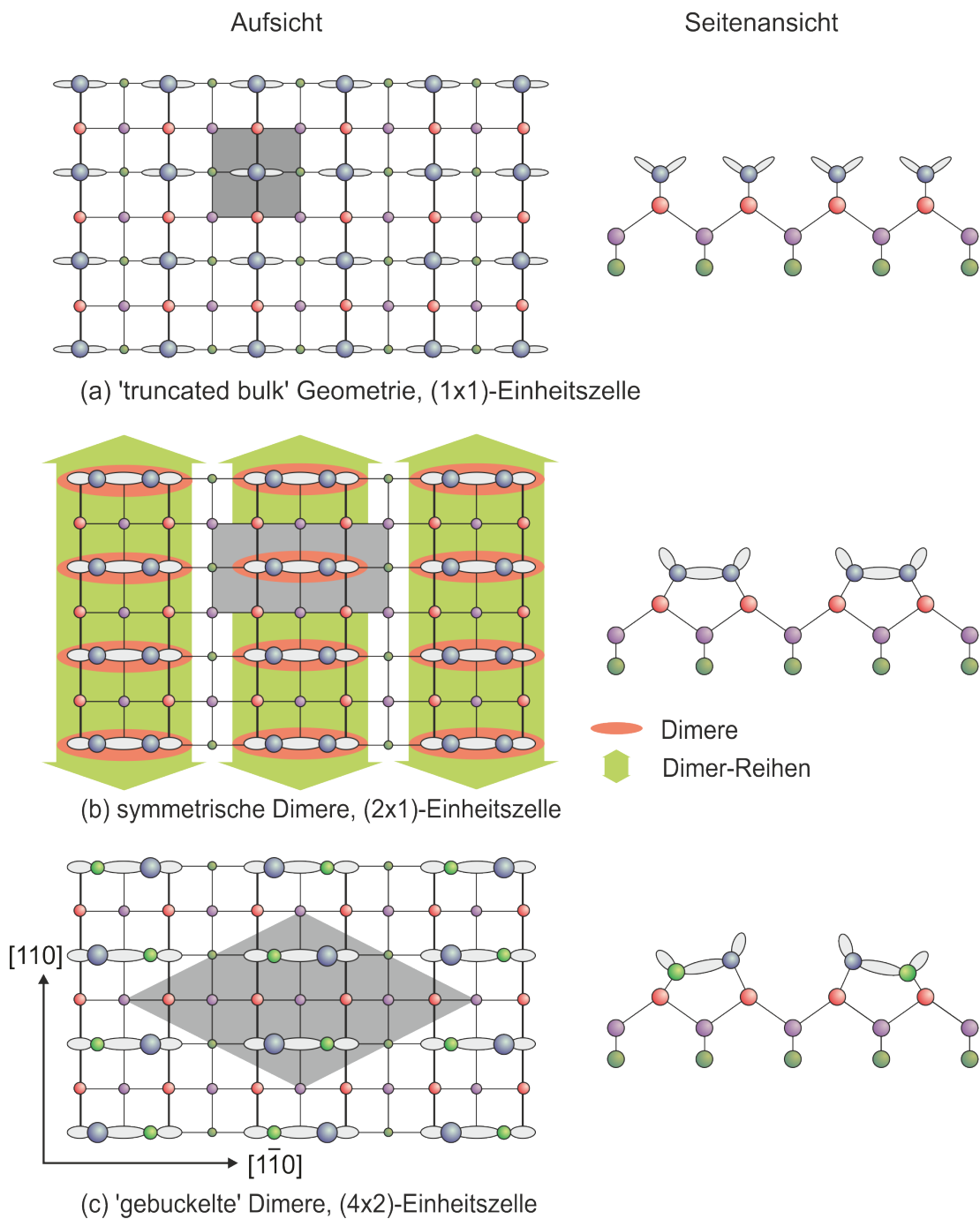


Abbildung 1.2: Schematische Darstellung der Bindungskonfiguration der Si(001)-Oberfläche. Links ist jeweils die Aufsicht und rechts die Seitenansicht der Oberfläche gezeigt. (a) Frisch erzeugte (001)-Oberfläche vor der Rekonstruktion. Jedes Oberflächenatom besitzt zwei ungesättigte Bindungen (Dangling Bonds). Es ergibt sich die sogenannte “truncated Bulk”-Geometrie mit einer (1×1)-Einheitszelle. (b) Aus energetischen Gründen gehen jeweils zwei Oberflächenatome eine Bindung miteinander ein. Es entstehen Dimere und Dimerreihen und damit eine (2×1)-Einheitszelle. (c) Diese “Dimerisierung” muss nicht zwingend symmetrisch erfolgen. Im Falle von gebuckelten Dimeren kann beispielsweise auch eine c(4×2)-Rekonstruktion entstehen. Abbildung in Anlehnung an [6] entnommen aus [7].

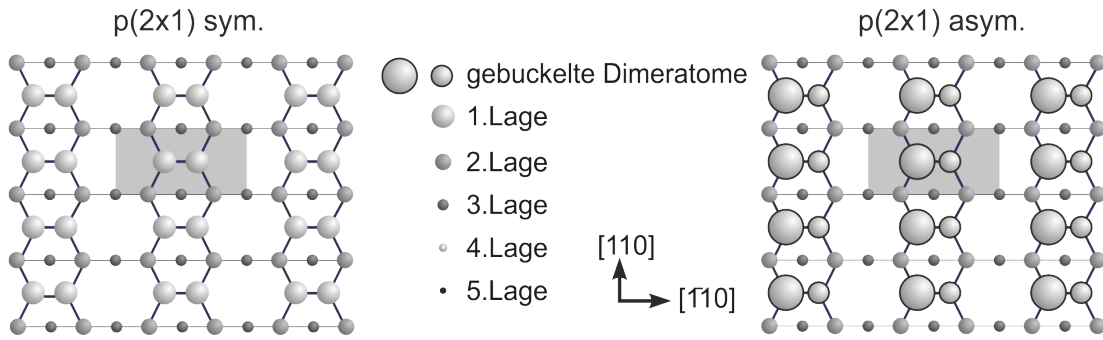


Abbildung 1.3: Skizze der beiden unterschiedlichen Arten einer (2×1)-Rekonstruktion in Aufsicht. (a) Die symmetrische (2×1)-Struktur entspricht der Situation in Abbildung 1.2 (a), bei der ausschließlich symmetrische Dimere an der Rekonstruktion beteiligt sind. (b) Im Falle von gebuckelten Dimeren, die zusätzlich alle in die selbe Richtung gebuckelt sind, entsteht ebenfalls eine (2×1)-Einheitszelle. Diese Rekonstruktion ist im relevanten Temperaturbereich allerdings nicht stabil. Die Dimere wechseln hingegen sehr hochfrequent zwischen der recht- und linksgebuckelten Form und erscheinen daher im Mittel symmetrisch, wie in (a). Abbildung in Anlehnung an [12] verändert entnommen aus [13]

Arbeit äußerst wichtig, weshalb darauf hier nochmal explizit hingewiesen wird.

Einen zusätzlichen Energiegewinn kann die Oberfläche durch die Ausbildung von sogenannten gebuckelten Dimeren erzielen. Diese Situation wird in Abbildung 1.2 (c) gezeigt. Dabei nehmen die beiden an der Rekonstruktion beteiligten Oberflächenatome eine unterschiedliche Höhe ein, sodass es zu einer in Winkel und Länge asymmetrischen Ausbildung der Dimerbindung kommt.

Durch unterschiedliche Kombinationen der beiden möglichen Dimerarten (symmetrische und gebuckelte) können insgesamt vier verschiedene Oberflächenrekonstruktionen entstehen, über deren Energiedifferenzen in der Arbeit von Ramstad et al. ein guter Überblick gegeben wird [14]. Für den Fall der in Abbildung 1.2 (c) gezeigten Anordnung entsteht beispielsweise die eingezeichnete c(4×2)-Rekonstruktion. Wäre in dieser Abbildung die mittlere Dimerreihe um eine Position nach oben oder unter verschoben, die alternierend gebuckelten Dimerreihen also symmetrisch zueinander, so entstünde als zweite mögliche Rekonstruktion eine (2×2)-Struktur. Sowohl die c(4×2)-, als auch die (2×2)-Rekonstruktion spielen allerdings in dem in dieser Arbeit untersuchten Temperaturbereich keine Rolle und sind erst bei viel tieferen Temperaturen zu beobachten [15]. Die anderen beiden möglichen Rekonstruktionen sind in Abbildung 1.3 gezeigt. Dabei handelt es sich zum einen um eine reine (2×1)-Rekonstruktion aus symmetrischen Dimeren wie sich auch in Abbildung 1.2 (b) gezeigt wurde und zum anderen um eine reine

Rekonstruktion aus den gebuckelten Dimeren, bei der die Dimere jedoch alle in die selbe Richtung gebuckelt sein müssen. Im letzteren Fall entsteht eine asymmetrische (2×1) -Struktur, die bei Temperaturen über etwa 200 K jedoch nicht stabil ist und ebenfalls symmetrisch erscheint, weil die Dimere mit einer sehr hohen Frequenz (10^{11} s^{-1} für Raumtemperatur) zwischen rechts- und linksgebuckelt hin und her wechseln [15]. Beide (2×1) -Rekonstruktionen können im für diese Arbeit relevanten Temperaturbereich koexistieren und sind sich in soweit ähnlich, als dass im Folgenden nur noch von “der” (2×1) -Rekonstruktion gesprochen wird, ohne explizit zwischen den beiden zu unterscheiden.

1.1.2 Stufen auf vizinalen Si(001)-Oberflächen

Als vizinal werden hier (001)-Oberflächen bezeichnet, die eine leichte Fehlneigung gegenüber der Kristallhauptsymmetrieebene haben. Um solche Oberflächen genau zu definieren, sind entsprechend hohe Miller Indizes nötig. Bei nur leicht fehlgeneigten Oberflächen ist es allerdings einfacher, eine Fehlneigung abweichend von der (001)-Ebene anzugeben. In der Realität wird es praktisch nicht gelingen einen Silizium Kristall exakt entlang der (001)-Ebene zu schneiden und so eine nicht fehlgeneigte Oberfläche zu präparieren; Wie später noch diskutiert werden wird, ist eine nicht fehlgeneigte Si(001)-Oberfläche aus energetischen Gründen ohnehin nicht stabil. Folglich wird in den vorgestellten Experimenten immer mit leicht vizinalen Si(001)-Oberflächen gearbeitet.

Die im letzten Kapitel behandelte Oberflächenrekonstruktion der (001)-Ebene muss also in gewissen Abständen gebrochen werden, sodass sich Stufen ausbilden können, um als Oberfläche im Mittel der entsprechenden Fehlneigung nachzukommen. Die möglichen Stufen für eine Si(001)-Oberfläche wurden als erstes von Chadi et al. [16] berechnet und sind in Abbildung 1.4 gezeigt. Im oberen rechten Teil der Abbildung ist die bekannte (2×1) -Rekonstruktion zu sehen, welche hier die topografisch höchste Ebene darstellt. Der linke Teil der Abbildung zeigt die darunter liegende Ebene, deren Oberflächenatome im Wesentlichen die gleiche Anordnung bilden wie in der obersten, mit dem Unterschied, dass diese jedoch um 90° gedreht ist. Entsprechend bildet sich auch die gleiche Oberflächenrekonstruktion mit den diskutierten Dimeren und Dimerreihen, die folglich auch um 90° gedreht sind. Diese Drehung der Rekonstruktion ist auch wieder bei der darunterliegenden, dritten Ebene (rechts unten in Abbildung 1.4) der Fall, sodass

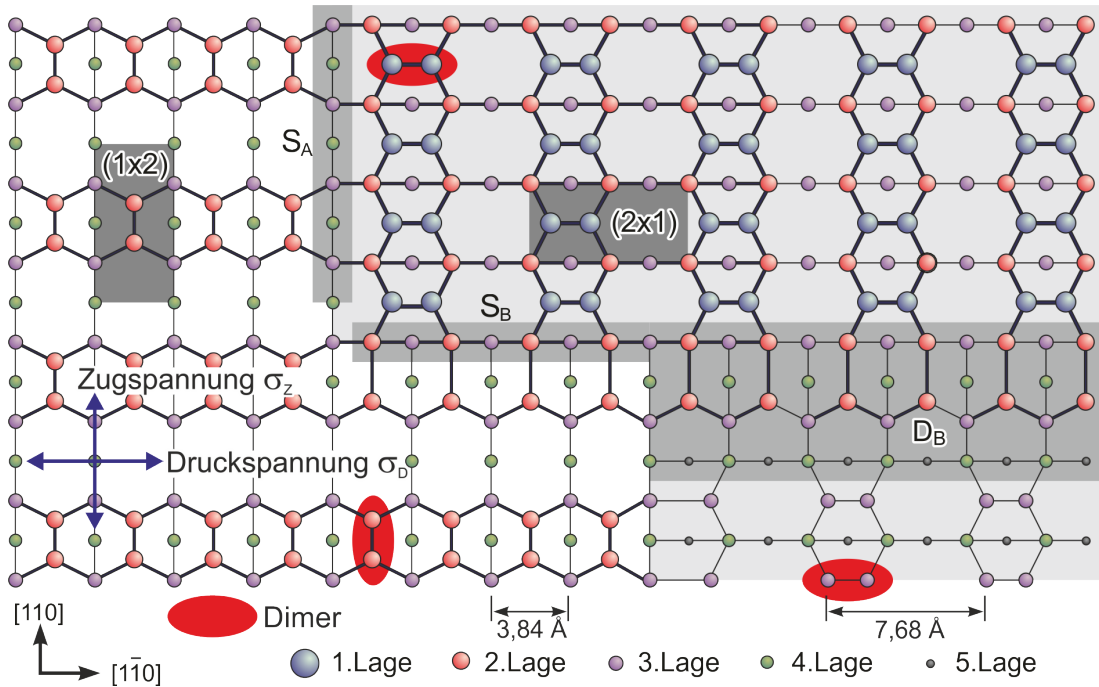


Abbildung 1.4: Schematische Darstellung der unterschiedlichen Ebenen und Stufen auf einer leicht vizinalen Si(001)-Oberfläche in Aufsicht. Dimere (rote Ellipsen) bzw. Dimerreihen sind von Ebene zu Ebene jeweils um 90° gedreht, d.h. es wechseln sich mit jeder Ebene (2×1)- und (1×2)-Rekonstruktionen (graue Rechtecke) ab. Je nach Ausrichtung der Einzelstufen relativ zu den Dimerreihen wird zwischen S_A Stufen (parallel zu den Dimerreihen der oberen Ebene) und S_B Stufen (senkrecht auf den Dimerreihen der oberen Ebene) unterschieden. Analog dazu können sich auch je nach Ausrichtung zwei unterschiedliche Doppelstufenarten D_A und D_B bilden. Die Rekonstruktion führt zu einer anisotropen Verspannung auf der Oberfläche, die je nach relativer Orientierung zu den Dimeren positiv (Druckspannung σ_D) oder negativ (Zugspannung σ_z) sein kann (blaue Pfeile). Abbildung nach [12] leicht verändert entnommen aus [7].

insgesamt jede zweite atomare Lage auf der Oberfläche äquivalent ist. Folglich bilden sich auf der Oberfläche ausschließlich die in der Abbildung verdeutlichten (2×1)- und (1×2)-Rekonstruktionen aus, die im Folgenden auch als Domänen oder Terrassen bezeichnet werden. Beispielhaft ist in jeder Ebene eines der entsprechenden, zueinander gedrehten Dimere rot gekennzeichnet.

Zwischen diesen zwei verschiedenen Domänen befindet sich jeweils eine einzelne atomare Stufe. Aufgrund der um 90° gedrehten Geometrie können sich dabei zwei verschiedene Stufenarten bilden, die in Abbildung 1.4 mit S_A und S_B gekennzeichnet sind. S_A Stufen verlaufen dabei immer parallel zu den Dimerreihen der oberen Terrasse und S_B Stufen stehen immer senkrecht auf diesen. Experimentell konnte

beobachtet werden, dass S_A Stufen einen relativ geraden Verlauf auf der Oberfläche haben, wohingegen S_B Stufen im Vergleich auch relativ unruhig verlaufen können [17]. Energetisch kann dies mit Hilfe der Abbildung 1.4 recht einfach klar gemacht werden; braucht es doch deutlich mehr Energie eine Dimerreihe von der Seite her aufzubrechen als eine solche um ein Dimer zu verkürzen. Zudem haben Rechnungen gezeigt, dass S_A Einzelstufen energetisch günstiger sind als S_B Einzelstufen [16] (siehe hierfür auch Abschnitt 1.2.1).

Neben den Einzelstufen kann die Oberfläche auch Doppelstufen ausbilden. Hier gibt es entsprechend der obigen Diskussion ebenfalls wieder die Möglichkeit für zwei unterschiedliche Doppelstufen D_A und D_B . Abbildung 1.4 zeigt im unteren rechten Bereich als Beispiel den Fall einer D_B Stufe.

Experimente haben gezeigt, dass sich auf vizinalen Si(001)-Oberflächen je nach Stärke der Vizinalität unterschiedliche Arten von Stufen ausbilden, um die Fehlneigung zu kompensieren. Oberhalb einer Fehlneigung von etwa 4° sind fast nur noch Doppelstufen zu finden [18], wobei dieser Wert der Fehlneigung zusätzlich temperaturabhängig ist [19]. Darunter finden sich hingegen nur noch Einzelstufen, die im Allgemeinen recht gerade verlaufen. Doch selbst bei nahezu ideal geschnittenen Si(001)-Oberflächen, wie sie in einigen Teilen der Arbeit verwendet und in Abschnitt 2.3.1 eingeführt werden, sind deutlich mehr Stufen vorhanden, als zur Kompensation der Fehlneigung eigentlich notwendig wären. Für Fehlneigungen unter etwa $0,2^\circ$ ist die intrinsische Verspannung der Rekonstruktion nämlich so groß, dass die Oberfläche atomar leicht aufraut und sich in gewissen Abständen Einzelstufen bilden. An diesen geht es im Mittel abwechselnd rauf und runter, so dass sie makroskopisch für die Fehlneigung keine Rolle spielen [20, 21]. Für noch geringere Fehlneigungen unter $0,1^\circ$ bzw. unter $0,03^\circ$ sind zusätzlich noch Effekte eines Übergangs von relativ geraden Stufen hin zu auf großer Skala gewellten Stufen bzw. hin zu flachen Hügeln beobachtet worden [22, 23].

Zusammenfassend ist daher zu sagen, dass für diese Arbeit insbesondere die zwei unterschiedlichen Einzelstufenarten von Bedeutung sein werden. Doppelstufen spielen hingegen aufgrund der geringen Fehlneigung der Proben, zumindest für die atomar sauberen Silizium Oberflächen, keine Rolle. Gold-Adsorption bei hohen Temperaturen könnte diese Situation ändern, wie in Kapitel 4 gezeigt werden wird.

1.1.3 Verspannung vizinaler Si(001)-Oberflächen

Der im vorangegangenen Abschnitt diskutierte Übergang von Einzel- zu Doppelstufen mit zunehmender Fehlneigung sowie das Aufrauen bei sehr geringer Fehlneigung ist im Wesentlichen auf eine intrinsischen Verspannung der Oberfläche zurückzuführen. Die gesamte Rekonstruktion führt mit der Bildung von Dimeren zu einer anisotropen Verspannung der Domänen, die mit Hilfe des zweidimensionalen Verspannungstensors

$$\sigma_{ij} = \begin{pmatrix} \sigma_D & 0 \\ 0 & \sigma_Z \end{pmatrix} \quad (1.1)$$

beschrieben werden kann. σ_D bezeichnet dabei die positive Druckspannung, die parallel zu den Dimeren wirkt und σ_Z ist die negative Zugspannung, die gerade senkrecht zu den Dimeren orientiert ist (blaue Pfeile in Abbildung 1.4). Durch theoretische Berechnungen konnten als Werte für diese beiden Komponenten des Verspannungstensors $\sigma_D = 0,047 \text{ eV}/\text{\AA}^2$ und $\sigma_Z = -0,132 \text{ eV}/\text{\AA}^2$ ermittelt werden [24].

Neben dieser Verspannung der Terrassen führen auch Stufen auf der Oberfläche ebenfalls zu einem zusätzlichen Verspannungsterm. Diese Stufen stellen Diskontinuitäten im Festkörper dar und erzeugen Spannungsfelder, die sowohl mit den Verspannungen im Festkörper, aber auch miteinander wechselwirken [20, 25]. Die dadurch entstehende Stufen-Stufen-Wechselwirkung über die Spannungsdipole ist im Marchenko-Parshin-Modell [26] als proportional zum inversen Quadrat des Stufenabstandes vorhergesagt und auch in späteren Arbeiten als solches verifiziert worden [27, 28, 25]. Für leicht vizinale Si(001)-Oberflächen ist dieser Wechselwirkungsmechanismus der dominierende Faktor für die Stufenkonfiguration [28].

Neben der intrinsischen Verspannung der Oberfläche hat auch eine extrinsische Verspannung signifikante Auswirkungen auf die Oberflächenmorphologie und insbesondere auf das Flächenverhältnis der (2×1) - und (1×2) -Domänen [20]. Experimente, bei denen die LEED-Reflexe als Funktion einer von außen herbeigeführten Probenverspannung ausgewertet wurden, haben gezeigt, dass bei einer Verzerrung von etwa 0,1% (19 mm lange Probe um 0,8 mm gebogen) ein Terrassentyp bereits zu 90% die Oberfläche dominiert [29]. Eine solche Dominanz konnte dabei reversibel in beide Verspannungsrichtungen für den jeweils anderen Terrassentyp

beobachtet werden. Spätere Arbeiten konnten diesen Befund unter anderem mit STM-Messungen (Rastertunnelmikroskopie) bestätigen und zeigen, dass dies für eine extrinsische Verspannung der Probe relativ zur Orientierung der Dimere und Dimerreihen gilt und weitestgehend unabhängig von der Temperatur ist [27, 28]. Als Grund für diesen Effekt konnte in den genannten Arbeiten eine Minimierung der Energie des langreichweitigen Verspannungsfeldes ausgemacht werden. Dieses reicht in den Festkörper hinein und wird sowohl durch den anisotropen Verspannungstensor der Domänen, als auch durch die Verspannungsdipole der Stufen gebildet.

1.1.4 Gold auf Si(001)

In Kapitel 4 dieser Arbeit werden die vorher diskutierten Eigenschaften der Si(001)-Oberfläche bei hohen Temperaturen zusätzlich unter der Adsorption von Gold (Au) untersucht. Hierfür ist es wichtig, die Eigenschaften dieses Elementes zu kennen und insbesondere zunächst das Wachstumsverhalten von Gold auf Si(001) im relevanten Temperaturregime zu diskutieren. Gold ist ein Element der ersten Nebengruppe und besitzt eine Schmelztemperatur von 1064°C [2]. Diese ist damit geringer als die von Silizium und liegt teilweise sogar für einige Experimente im Bereich der Substrattemperatur.

Die Rekonstruktion von Gold auf Si(001) hängt zum einen von der Temperatur und zum anderen von der Bedeckung ab. Eine gute Übersicht hierzu findet sich in der Arbeit von Kageshima et al. [30] und in dem Fachbuch von Lifshits et al. [31]. LEED- (Niederenergetische Elektronenbeugung) und AES-Untersuchungen (Augerelektronenspektroskopie) haben gezeigt, dass sich bei einer Temperatur zwischen 600°C und 750°C und einer Goldbedeckung von mehr als 0,5 Monolagen (ML) eine $c(8 \times 2)$ -Struktur ausbildet [32]. In dem für diese Arbeit relevanten, höheren Temperaturbereich (über 760°C) wird von einer $(\sqrt{26} \times 3)$ -Struktur berichtet [32], die sich später allerdings als eine Mischphase aus der $(\sqrt{26} \times 3)$ -Struktur in Kombination mit der (5×3) -Struktur herausstellt [33]. Diese Misch-Rekonstruktion wird in späteren Arbeiten aufgrund des beobachteten Beugungsbildes auch als $(5 \times 3, 2)$ -Struktur bezeichnet [34, 35] und soll daher im Folgenden auch in dieser Arbeit so genannt werden. XPS-Untersuchungen (Röntgenphotoelektronenspektroskopie) gaben Hinweise darauf, dass sich bei diesen Temperaturen in den ersten beiden atomaren Lagen des Siliziums, unabhängig von der

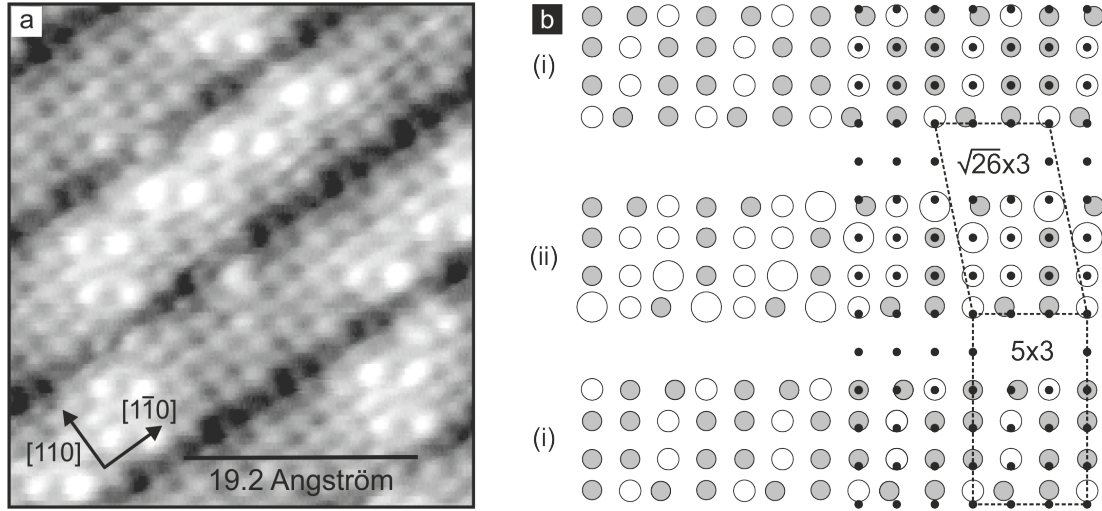


Abbildung 1.5: (a) STM Aufnahme der Gold $(5 \times 3, 2)$ -Misch-Rekonstruktion auf Si(001). Es zeige sich zwei verschiedene Streifentypen in $[1\bar{1}0]$ -Richtung, die durch Gräben voneinander getrennt sind. Bild entnommen aus [37]. (b) Schematische Darstellung dieser Rekonstruktion mit den zwei Streifentypen (i) und (ii). Es ergeben sich eine (5×3) -Rekonstruktion (aus Streifentyp (i)) und eine $(\sqrt{26} \times 3)$ -Rekonstruktion (aus Streifentyp (ii)), die gemeinsam die $(5 \times 3, 2)$ -Mischphase bilden. Die schwarzen Punkte geben zusätzlich die Positionen der Si-Atome an. Abbildung verändert entnommen aus [33].

Depositionsmenge, immer nur etwa 0,6 Monolagen Gold ansammeln [33]. Weiteres Gold diffundiert bei diesen Temperaturen tief in den Festkörper hinein [33] oder sammelt sich in Form von Inseln auf der Oberfläche [36]. Solch eine Sättigung konnte auch in weiteren Arbeiten mittels MEIS-Untersuchungen (Mittelenergetische Ionenspektroskopie) bestätigt werden, sodass die maximale Goldbedeckung auf der Oberfläche für die $(5 \times 3, 2)$ -Mischrekonstruktion immer bei etwa 0,62 Monolagen liegt [34].

Abbildung 1.5 (a) zeigt eine STM-Aufnahme dieser diskutierten Mischphase aus der Arbeit von Hild [37]. Zu erkennen sind zwei unterschiedliche Streifentypen in $[1\bar{1}0]$ -Richtung, die jeweils durch Gräben voneinander getrennt sind. Entsprechend der Arbeit von Lin et al. [33] werden diese im Folgenden als Typ (i) und Typ (ii) Streifen bezeichnet. Eine entsprechende Skizze dieser Rekonstruktion wurde leicht verändert aus der Originalarbeit entnommen und ist in Abbildung 1.5 (b) gezeigt. In dieser Abbildungen sind auch die Einheitszellen der $(\sqrt{26} \times 3)$ -Struktur und der (5×3) -Struktur eingezeichnet. Auf die genauen Unterschiede der in verschiedenen Grautönen dargestellten Atome soll an dieser Stelle nicht weiter eingegangen werden. Ebenso wenig auf eine Erklärung des genauen Zu-

standekommens der $(5 \times 3, 2)$ -Struktur im LEED-Bild. Diesbezüglich sei auf die entsprechende Literatur verwiesen [33, 38, 37, 30].

In Abbildung 1.5 (b) sind zusätzlich im rechten Teil noch die Si(1x1)-Atompositionen angedeutet (schwarze Punkte). Mit Hilfe dieser kann nicht nur die Größe der Einheitszellen bestimmt werden, sondern es ist auch zu erkennen, dass die Streifen beider Typen senkrecht zur Streifenrichtung leicht gestaucht sind. Diese Stauchung beträgt nach Lin et al. [33] 17%. Ein weiterer Nebenaspekt, der durch die Bestimmung dieser Kompression gezeigt werden konnte und für diese Arbeit relevant ist, ist die Tatsache, dass auch die Streifen der $(5 \times 3, 2)$ -Rekonstruktion, genau wie die Dimerreihen auf einer reinen Si(001)-Oberfläche, mit jeder atomaren Si-Stufe um 90° gedreht sind.

Aufgrund des hohen Temperaturbereichs in den durchgeführten Experimenten ist die Bedeckung von Gold auf der Oberfläche von dem Gleichgewicht aus Adsorption und Desorption/Diffusion/Inselbildung abhängig. Daher wäre eine Messung der deponierten Goldmenge, beispielsweise mit Hilfe einer Quarzwaage, nicht aussagekräftig. Die an Stellen dieser Arbeit angegebenen Goldbedeckungen beruhen daher einzig auf der Kalibrierung mittels Extrapolation der diskutierten 0,62 Monolagen Bedeckung bei Sichtbarwerden des $(5 \times 3, 2)$ -LEED Spots.

1.2 Thermodynamische Beschreibung von Stufen

Um die experimentellen Ergebnisse dieser Arbeit zu verstehen und erklären zu können, ist es hilfreich, sich zumindest grundlegend mit der Theorie der thermodynamischen Beschreibung von Stufen zu befassen. Dieser Abschnitt ist dabei ganz bewusst nur auf die wesentlichen Dinge reduziert. Die Beschreibung zeigt den aktuellen Wissensstand und stützt sich dabei hauptsächlich auf die Bücher von Duxbury und Pence [39] und Ibach [40] sowie auf die Arbeiten von Pimpinelli et al. [41], Selke [42] und Giesen [43], welche alle eine sehr gute Übersicht über dieses komplexe Themengebiet bieten. Zunächst werden im Folgenden kurz die für eine Stufe relevanten Energiebeiträge erläutert. Anschließend wird auf thermisch aktivierte Stufenbewegungen und den Aufrauungsphasenübergang eingegangen, bevor diese schließlich im Rahmen des sogenannten Solid-on-Solid Modells theoretisch beschrieben und diskutiert werden.

1.2.1 Übersicht und Eigenschaften der Energiebeiträge

Die experimentellen Beobachtungen und Ergebnisse dieser Arbeit werden immer wieder auf das Zusammenspiel von verschiedenen Energiebeiträgen der Stufen bzw. der Oberfläche zurückgeführt und mit Hilfe dieser erklärt. Daher wird im Folgenden eine kurze Übersicht der wichtigsten Energiebeiträge auf der gestuften Oberfläche gegeben und deren Eigenschaft diskutiert. Zur besseren Übersicht sind diese Energiebeiträge sowie andere relevante Größen, zusätzlich in Abbildung 1.6 anhand der Skizze einer Einzelstufe an den entsprechenden Stellen schematisch dargestellt. Insbesondere die Abhängigkeit von der Temperatur spielt für diese Arbeit eine entscheidende Rolle. Bei der gezeigten Übersicht ist jedoch nicht immer eine explizite Temperaturabhängigkeit (wie bspw. in Formel 1.4) ersichtlich. Viele der Prozesse sind thermisch aktiviert, andere sind wiederum temperaturunabhängig. Entsprechende Details sind zumeist unter dem jeweiligen Beitrag zu finden.

1.2.1.1 Freie Energie einer Stufe

Die freie Energie F_S einer Stufe ist gerade die Energie, die benötigt wird um eine Stufe zu bilden, sodass diese bei einer Temperatur T im thermodynamischen Gleichgewicht mit der Umgebung steht. Allgemein ist die freie Energie definiert als $F = U - TS$ mit der inneren Energie des Systems U und deren Entropie S . Für die freie Energie einer Stufe geht dieser Ausdruck in

$$F_S = E_S - TS_S \quad (1.2)$$

über mit der Enthalpie E_S , die benötigt wird eine Stufe zu bilden, und der Stufenentropie S_S . E_S entspricht dabei gerade der inneren Energie U im allgemeinen Fall.

1.2.1.2 Stufenentropie

Allgemein ist die Entropie S in der statistischen Mechanik ein Maß für die Anzahl der energetisch gleichwertigen und zugänglichen Mikrozustände. Die Stufenentropie S_S ist dementsprechend für isolierte, ungestörte Einzelstufen deutlich größer, als für nah nebeneinander liegende und miteinander wechselwirkende Stufen. S_S

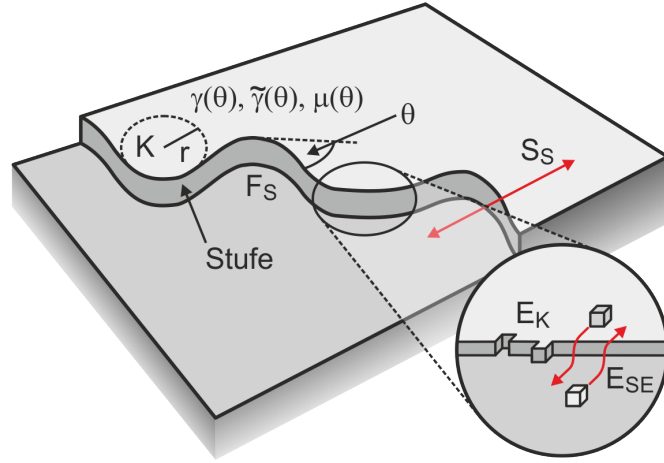


Abbildung 1.6: Schematische Darstellung der Energiebeiträge sowie einiger anderer relevanter Größen an einer Stufe. Im einzelnen sind das: Die freie Stufenenergie F_S , die Stufenentropie S_S , die Kinkenenergie E_K , die Schwoebel-Ehrlich-Barriere E_{SE} , die Linienspannung γ , die Stufensteifigkeit $\tilde{\gamma}$ und das Chemische Potential μ . Letztere drei sind anisotrop und hängen von dem Winkel θ zu der Richtung der dichtesten Atompackung auf der Oberfläche ab.

nimmt entsprechend mit steigender Stufendichte ab. Ohne weitere Einflüsse würden die Stufen im thermodynamischen Gleichgewicht immer einen Zustand maximaler Entropie anstreben, was zu äquidistanten Abständen der Stufen auf der Oberfläche führen würde.

1.2.1.3 Kinkenenergie

Lagert sich an einer lokal geraden Stufe ein einzelnes Atom an, so entsteht ein sogenannter Kinken. Ebenso kann sich aus einer lokal geraden Stufe ein einzelnes Atom herauslösen, was zur Entstehung eines Antikinkens führt. Bei Anlagerung von mehreren (n) Atomen an der selben Stelle spricht man von einem Kinken der Tiefe n . Die Energie eines einfachen Kinkens wird als Kinkenenergie E_K bezeichnet und ist für die S_A und S_B Einzelstufen auf einer Si(001)-Oberfläche experimentell auf $E_{K_A} = 0,028$ eV und $E_{K_B} = 0,09$ eV pro Atom bestimmt worden [17].

1.2.1.4 Linienspannung

Ganz allgemein ist die Linienspannung γ die Differenz zwischen der Oberflächenspannung einer idealen, ungestuften Oberfläche und der einer gestuften Oberfläche

che pro Stufe und Gitterplatz. Im Rahmen des im nächsten Abschnitt diskutierten Solid-on-Solid Modells entspricht die Linienspannung im Vakuum gerade der spezifischen freien Energie einer Stufe pro Länge, sodass gilt $F_S = \int \gamma ds$. Die Linienspannung ist stark anisotrop, d.h. von der Stufenrichtung auf der Oberfläche abhängig. Sie wird deshalb in Abhängigkeit eines Winkels θ angegeben, wobei $\theta = 0^\circ$ als Richtung entlang der dichtesten Atompäckung auf der Oberfläche definiert ist. Experimentelle Arbeiten haben gezeigt, dass die Linienspannung im hier relevanten Hochtemperaturbereich nahezu linear mit steigender Temperatur sinkt [44].

1.2.1.5 Stufensteifigkeit

Für kurvige Stufen kann die Änderung der freien Energie aus der genauen Form der Stufenkontur berechnet werden. Hierzu ist es hilfreich die Stufensteifigkeit $\tilde{\gamma}$ zu definieren, die wie folgt mit der Linienspannung γ zusammenhängt und dementsprechend auch von der lokalen Orientierung der Stufe abhängt:

$$\tilde{\gamma}(\theta) = \gamma(\theta) + \frac{\partial^2 \gamma(\theta)}{\partial \theta^2} \quad (1.3)$$

Im Rahmen des Solid-on-Solid Modells (Abschnitt 1.2.3) konnte des Weiteren eine Temperaturabhängigkeit der Stufensteifigkeit berechnet werden [45]:

$$\tilde{\gamma} = \frac{2k_B T a_{\parallel}}{a_{\perp}^2} \sinh\left(\frac{E_K}{2k_B T}\right) \quad (1.4)$$

mit der Kinkenenergie E_K und dem Platz a_{\parallel} und a_{\perp} , den ein Oberflächenatom parallel bzw. senkrecht zur Stufenkante einnimmt. Für eine (001)-Oberfläche ist $a_{\parallel} = a_{\perp}$ und der gefundene Ausdruck für die Stufensteifigkeit vereinfacht sich entsprechend. Speziell für die hier relevante Si(001)-Oberfläche ist die Temperaturabhängigkeit auch experimentell und getrennt für die S_A und S_B Einzelstufen bestimmt worden [46]. Bartelt und Tromp konnten in dieser Arbeit zeigen, dass die Stufensteifigkeit in einem Temperaturbereich von 800°C bis 1100°C für S_A Stufen mit steigender Temperatur deutlich abnimmt, während sie für S_B Stufen nahezu konstant bleibt.

1.2.1.6 Chemisches Potential

Mit Kenntnis der Stufensteifigkeit kann auch das chemische Potential μ angegeben werden, welches ein Maß für die Variation der freien Energie für kurvige Stufen ist. Mit der Fläche, die ein Oberflächenatom einnimmt, $\Omega = a_{\parallel} a_{\perp}$ und der lokalen Krümmung der Stufe

$$K = -\frac{\partial\theta}{\partial s} = -\frac{\partial^2 x}{\partial y^2} \left(1 + \left(\frac{\partial x}{\partial y} \right)^2 \right)^{-3/2} \quad (1.5)$$

ergibt sich das chemische Potential einer Stufe zu

$$\mu = \Omega K \tilde{\gamma} \quad (1.6)$$

1.2.1.7 Schwoebel-Ehrlich-Barriere

Die Schwoebel-Ehrlich-Barriere E_{SE} (oft auch Ehrlich-Schwoebel-Barriere) stellt eine Potentialbarriere an Stufenkanten für diffundierende Oberflächenatome dar [47]. Sie ist definiert als

$$E_{SE} = E_{AB} - E_D \quad (1.7)$$

mit der eigentlichen Aktivierungsenergie zum Überwinden der Barriere E_{AB} und der Energie, die notwendig ist, um die Diffusionsbarrieren auf der Oberfläche zu überwinden E_D . Ist E_{SE} deutlich größer als E_D , so ist ein Teilchenaustausch im Rahmen der Diffusion zwischen zwei benachbarten Terrassen deutlich verringert und die diffundierenden Atome werden an der Stufenkante förmlich reflektiert. Es konnte gezeigt werden, dass die Höhe der Schwoebel-Ehrlich-Barriere mit steigender Temperatur sinkt [48], sodass es auch zwischen den Terrassen mehr und mehr zu einem Teilchenaustausch kommt und die Stufenkanten für die Diffusion immer weniger eine Rolle spielen.

1.2.2 Thermisch aktivierte Stufenkinetik:

Der Aufrauungsphasenübergang

Da die Experimente in dieser Arbeit bei Temperaturen von 750°C und mehr durchgeführt werden, verhält sich die Si(001)-Oberfläche und damit auch insbesondere solch eine diskutierte Einzelstufe, keinesfalls statisch. Es können sich einzelne Atome von der Stufe lösen und an anderer Stelle wieder gebunden werden. Dies führt zu einer fluktuierenden Bewegung der Stufe (Mäanderbewegung), die entsprechend mit der Temperatur zunimmt. Auch können sich Oberflächenatome direkt aus den Terrassen lösen und über diese diffundieren, was in der Regel allerdings mit einem deutlich höheren Energieaufwand verbunden ist [49]. Bei Erreichen einer ausreichend hohen (kritischen) Temperatur T_R kann es auf diese Weise sogar zu einem Aufrauungsphasenübergang für die Oberfläche kommen. Ab dieser Temperatur können sich Stufen auch spontan bilden, da die freie Energie F_S der Stufenbildung gerade Null wird.

Das thermisch aktivierte Aufrauen ist in zahlreichen Experimenten beobachtet und beschrieben worden [50, 51, 52, 53] und für die Si(001)-Oberfläche ab einer kritischen Temperatur von $T_R \approx 1200^\circ\text{C}$ zu beobachten [51]. Ab dieser Temperatur ist es daher auch in den gezeigten Experimenten in dieser Arbeit nicht mehr möglich, die Oberfläche sinnvoll zu beobachten.

Die theoretische Beschreibung der diskutierten Stufenfluktuationen und damit auch des Aufrauungsphasenübergangs erfolgt am besten mit Hilfe eines Solid-on-Solid Modells, welches im Folgenden genauer vorgestellt wird.

1.2.3 Stufenfluktuationen im Solid-on-Solid-Modell

Im klassischen zweidimensionalen Solid-on-Solid (SOS) Modell ist die Höhe der Oberfläche eindeutig festgelegt. Jeder Koordinate auf der Oberfläche (i, j) ist also genau eine Höheninformation $h(i, j)$ zugeordnet. Damit ist auch ausgeschlossen, dass Überhänge vorhanden sind. Die Oberflächenenergie ergibt sich so aus der Anzahl der nicht gesättigten Bindungen zwischen benachbarten Oberflächenatomen und der Bindungsenergie E_B . Die Hamilton-Funktion dieses Modells lautet

$$H = E_B \sum |h(i, j) - h(i', j')| \quad (1.8)$$

In einer Dimension beschreibt dieses SOS-Modell gerade eine Einzelstufe, wobei die Bindungsenergie E_B in diesem Fall der Kinkenenergie E_K entspricht.

1.2.3.1 Isolierte Einzelstufen

Im Folgenden soll eine Einzelstufe einer Länge L_S bei einer Temperatur deutlich unterhalb der kritischen Aufräumtemperatur $T \ll T_R$ betrachtet werden, so dass sich vernachlässigbar wenig Löcher bzw. Atome auf den Terrassen befinden. Das oben diskutierte Fluktuieren oder Mäandern tritt dann durch die Einzelprozesse des Lösens und Anlagerns eines Atoms von bzw. an der Stufe auf. Dabei ändert sich an der Stufenposition i die Auslenkung der Stufe u_i um jeweils Eins, sodass ein Kinken bzw. Antikinken entsteht. Insgesamt können Abweichungen von einer geraden Stufe ($u_i = \text{konstant}$) nun über eine zeitabhängige Korrelationsfunktion der Auslenkung beschrieben und gemessen werden:

$$G_r(t) = \sum \frac{1}{L_S} \langle (u_{i+r}(t) - u_i(0))^2 \rangle \quad (1.9)$$

Für eine Charakterisierung der Stufenfluktuation ist wesentlich das Langzeitverhalten der Korrelationsfunktion $G_{r=0}(t)$ an einem festen Ort $r = 0$ von Bedeutung. Mit Hilfe der Langevin-Differentialgleichung [54] kann gezeigt werden, dass die Fluktuation einem Potenzgesetz $G_{r=0}(t) \propto t^a$ folgt. Der Exponent a hängt im Wesentlichen von dem genauen Prozess des Lösungs-/Anlagerungsmechanismus ab. Dabei gibt es zwei mögliche Pfade: Bei der Stufendiffusion bewegen sich die Atome entlang der Stufe, wohingegen sich bei der Terrassendiffusion die Atome komplett von der Stufe lösen und sich nach einem “Random Walk” über die Terasse wieder an der Stufe anlagern. Theoretische Arbeiten haben einen Wert von $a = 1/4$ für die Stufendiffusion und $a = 1/3$ für die Terrassendiffusion berechnet [54].

Monte-Carlo-Simulationen, die auf diesem SOS-Modell basieren, konnten zeigen, dass für beide Diffusionsprozesse im Wesentlichen zwei Zeitskalen zu unterscheiden sind. Ausgehend von einer geraden Stufe fluktuieren die Auslenkungen anfangs nahezu diffusiv ($a = 1$). Anschließend sinkt jedoch der Exponent recht schnell auf den jeweils berechneten Wert. Der Grund dafür ist der Stufensteifigkeit geschuldet, die bei einer geraden Stufe noch keine Rolle spielte. Für eine konstante Temperatur wird jenseits des absoluten Zeitnullpunktes im realen Experiment folglich immer letzterer Bereich erreicht worden sein.

1.2.3.2 Stufen-Stufen-Wechselwirkung

Unter den selben Voraussetzungen wie für isolierte Einzelstufen (eindeutige Auslenkung bzw. Höhe, keine Überhänge, $T \ll T_R$) wird nun ein paralleles Stufenpaar im Abstand L voneinander betrachtet. Dadurch, dass die Amplitude der Stufenfluktuation durch die andere Stufe begrenzt ist, reduziert sich automatisch die Entropie im Vergleich zu einer isolierten Einzelstufe. Das führt zu einer rein repulsiven Wechselwirkung der beiden Stufen, obwohl die freie Energie dabei erhöht wird. Diese entropische Stufenabstoßung ist dabei ebenfalls proportional zu $1/L^2$, allerdings deutlich kleiner als die Stufen-Stufen-Wechselwirkung durch die Spannungsdipole (Abschnitt 1.1.3). Ohne externes “Pinning” (siehe hierzu Abschnitt 3.2.1) würden infolgedessen die Stufen immer weiter auseinanderdriften. Für mehrere (gleiche) Stufen stellt sich so auf Grundlage dieser Theorie ein äquidistanter Abstand zwischen diesen ein. Experimente haben gezeigt, dass die entropische Abstoßung, für durch eine leichte Fehlneigung entstandene Stufen, bei hohen Temperaturen zunimmt. Bei sehr tiefen Temperaturen, die für diese Arbeit allerdings nicht relevant sind, kann es hingegen sogar zur Bildung von Stufenbündeln kommen.

Das Langzeitverhalten der Stufenfluktuationen hängt bei Berücksichtigung der Wechselwirkung untereinander im Wesentlichen von der Höhe der Schwoebel-Ehrlich-Barriere ab. Ist diese klein, kann ein Teilchenaustausch auch zwischen den Terrassen und damit über die Stufen hinweg stattfinden. Die Korrelation wird erheblich erleichtert und der Exponent a ist mit $1/2$ noch größer als bei der Terrassendiffusion einer Einzelstufe. Im anderen Extremfall (große Schwoebel-Ehrlich-Barriere) ist es hingegen für ein abgelöstes Atom unmöglich sich an der unteren Stufe anzulagern. Bei sehr kleinen Stufenabständen ist auch eine Terrassendiffusion zu vernachlässigen und die Situation entspricht prinzipiell wieder dem Fall der Stufendiffusion mit $a = 1/4$.

1.2.4 Geschlossene Einzelstufen: Der Gibbs-Thomson-Effekt

Ein Stufenpaar wie im letzten Abschnitt kann auch aus einer ansteigenden und einer absteigenden Stufe bestehen. Für diesen Fall ist es sehr wahrscheinlich, dass es infolge der thermischen Fluktuationen der beiden Stufen nach einer gewissen Zeit zu Kontaktpunkten zwischen diesen kommt. Auf diese Weise entsteht min-

destens eine geschlossene Einzelstufe, bei der es sich dann um nichts anderes als eine Insel monoatomarer Höhe auf der Oberfläche handelt. Diese Situation tritt für eine saubere Si(001)-Oberfläche, wie bereits beschrieben, unter Anderem bei einer Fehlneigung unter $0,03^\circ$ auf. Wie in Kapitel 3.2 gezeigt wird, können solche Inseln bzw. sogar deutlich höhere Hügel, auch auf andere Weise erzeugt werden.

Die Form solcher Inseln im thermodynamischen Gleichgewicht hängt nun stark von der Temperatur ab. Experimente auf Cu(001) haben gezeigt, dass die Inselform, die bei $T = 0\text{ K}$ theoretisch ein Quadrat sein müsste, mit zunehmender Temperatur immer runder wird [55]. Daraus lässt sich schließen, dass auch die Entropie anisotropisch ist und für Stufen jenseits der $\theta = 0^\circ$ Richtung größer wird. Dies kann leicht verdeutlicht werden, da eine runde Form der Insel mit der Bildung vieler Kinken einhergeht, deren Kinkenenergie dafür zusätzlich aufgebracht werden muss.

Da für diese Arbeit hauptsächlich der Hochtemperaturbereich eine Rolle spielt, werden auch die beobachteten Inseln eine eher runde Form besitzen. Für die gemachten Beobachtungen wird also die Krümmung und die Stufensteifheit eine entscheidende Rolle spielen. Für eine annähernd kreisrunde Insel kann die lokale Krümmung durch den Radius der Insel R ausgedrückt werden. Dieser entspricht dabei im Wesentlichen der inversen Krümmung $1/K$. Für das chemische Potential (Gleichung 1.6) gilt dann $\mu \propto \Omega\tilde{\gamma}/R$. Unter der Annahme, dass das chemische Potential proportional zum Logarithmus des Druckes ist, folgt:

$$p \propto p_\infty \exp\left(\frac{\Omega\tilde{\gamma}}{R}\right) \quad (1.10)$$

Dabei sei p_∞ der Dampfdruck der glatten Oberfläche. Diese Gleichung ähnelt sehr stark der Gleichung, die den Gibbs-Thomson-Effekt beschreibt. Daher wird eigentlich auch bereits die oben genannte Gleichung 1.6 für das chemische Potential als Verallgemeinerung der Gibbs-Thomson-Gleichung verstanden. Das bedeutet, dass das Prinzip des Gibbs-Thomson-Effektes auch für den zweidimensionalen Fall einer (festen) Insel auf einer Oberfläche gilt [56]. Der “effektive Dampfdruck” der Insel ist durch das vergrößerte Verhältnis von Grenzfläche zu “Volumen” soweit erhöht, dass sich von kleinen Inseln die Stufenatome leichter lösen, als von Inseln mit einem größeren Radius. Dieser Effekt ist jedoch nicht nur auf Inseln beschränkt, sondern gilt allgemein auch für gekrümmte Stufen im Vergleich zu geraden Stufen und nimmt mit der Stärke der Krümmung K zu.

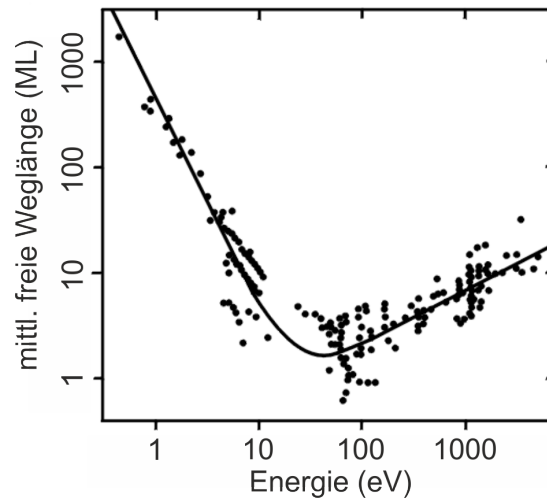


Abbildung 1.7: In der “Universellen Kurve” ist die mittlere freie Weglänge von Elektronen als Funktion ihrer Energie aufgetragen. Es wird deutlich, dass Elektronen mit einer Energie von etwa 20 eV bis 100 eV (im Bereich des Minimums der Kurve) eine besonders kleine mittlere freie Weglänge von nur wenigen Monolagen besitzen und daher extrem oberflächensensitiv sind. Abbildung entsprechend [57].

1.3 Abbildung mit niederenergetischen Elektronen

Das in Kapitel 2.2 beschriebene Mikroskop nutzt Elektronen mit einer Energie von nur einigen Elektronenvolt zur Abbildung der Oberfläche. Dabei wird der Wellencharakter der Elektronen ausgenutzt. Die De-Broglie-Wellenlänge liegt in der Größenordnung der Atomabstände im Gitter des Festkörpers, sodass sich Elektronen hervorragend zur Untersuchung mittels Beugung eignen. Langsame (also niederenergetische) Elektronen mit einer Energie von etwa 20 eV bis 100 eV besitzen dabei eine besonders geringe mittlere freie Weglänge im Festkörper von nur wenigen Monolagen, weshalb diese Methode der Beugung sehr oberflächensensitiv ist. Dieser Zusammenhang ist in der sogenannten “Universellen Kurve” [57] in Abbildung 1.7 dargestellt. Man erkennt deutlich ein Minimum der Kurve in dem genannten Energiebereich.

Zwar werden in der vorliegenden Arbeit Oberflächen hauptsächlich im Realraum untersucht, jedoch basiert das in Kapitel 2.2 vorgestellte Mikroskop, wie gerade diskutiert, auf dem Prinzip der Beugung. Daher, und nicht zuletzt auch um die gezeigten LEED-Bilder zu verstehen, ist es sinnvoll sich zunächst kurz mit der Theorie der Elektronenbeugung zu beschäftigen.

1.3.1 Elektronenbeugung

Im einfachsten Fall wird die Beugung von Elektronen an Kristalloberflächen durch eine kinematische Beugungstheorie beschrieben, bei der die Mehrfachstreuung vernachlässigt wird [58, 40]. Mit dem Wellenvektor der einfallenden Elektronenwelle \vec{k}_e und dem Wellenvektor des gestreuten Elektrons \vec{k}_g kann aus der Differenz dieser beiden Vektoren der Streuvektor $\vec{k} = \vec{k}_g - \vec{k}_e$ berechnet werden. Um letztlich die Intensität einer gebeugten Elektronenwelle bestimmen zu können, muss zunächst deren Amplitude berechnet werden. Diese berechnet sich mit n Atomen an den Positionen \vec{r}_n , die zur Beugung beitragen, durch die Summe über alle streuenden Atome:

$$A(\vec{k}, \vec{k}_e) = \sum_n f_n(\vec{k}, \vec{k}_e) \exp \left[i(\vec{k} \cdot \vec{r}_n) \right] \quad (1.11)$$

Dabei bezeichnet f_n den sogenannten Formfaktor, der ein Maß für den Streuquerschnitt ist. Dieser Formfaktor geht in der kinematischen Beugungstheorie in einen Formfaktor f der Einheitszelle über, da nicht mehr die Streuung an einzelnen Atomen, sondern der mittlere Streuquerschnitt an einer Einheitszelle betrachtet wird. Auf diese Weise kann der Formfaktor vor die Summe gezogen werden und die gesuchte Intensität ergibt sich aus dem Betragsquadrat der Amplitude:

$$I(\vec{k}, \vec{k}_e) = \left| f(\vec{k}, \vec{k}_e) \right|^2 \cdot \left| \sum_n \exp \left[i(\vec{k} \cdot \vec{r}_n) \right] \right|^2 = F(\vec{k}, \vec{k}_e) \cdot G(\vec{k}) \quad (1.12)$$

$F(\vec{k}, \vec{k}_e)$ ist dabei der sogenannte dynamische Formfaktor und $G(\vec{k})$ der Gitterfaktor. Abbildung 1.8 (a) zeigt die Situation in zwei Dimensionen für eine nicht fehlgeneigte periodische Oberfläche. Hier ist die Intensitätsverteilung über dem zweidimensionalen Koordinatensystem der einfallenden Wellenvektorkomponenten \vec{k}_\perp und \vec{k}_\parallel aufgetragen. Da, wie diskutiert, die Beugung langsamer Elektronen im Wesentlichen Informationen über die Oberfläche liefert, liegen bei dieser Auftragung die Intensitätsmaxima nicht in scharfen Reflexen, sondern auf Stangen im reziproken Raum. Das liegt daran, dass senkrecht zur Oberfläche keine Periodizität detektiert wird und der Streuvektor in diese Richtung entsprechend jeden Wert annehmen kann.

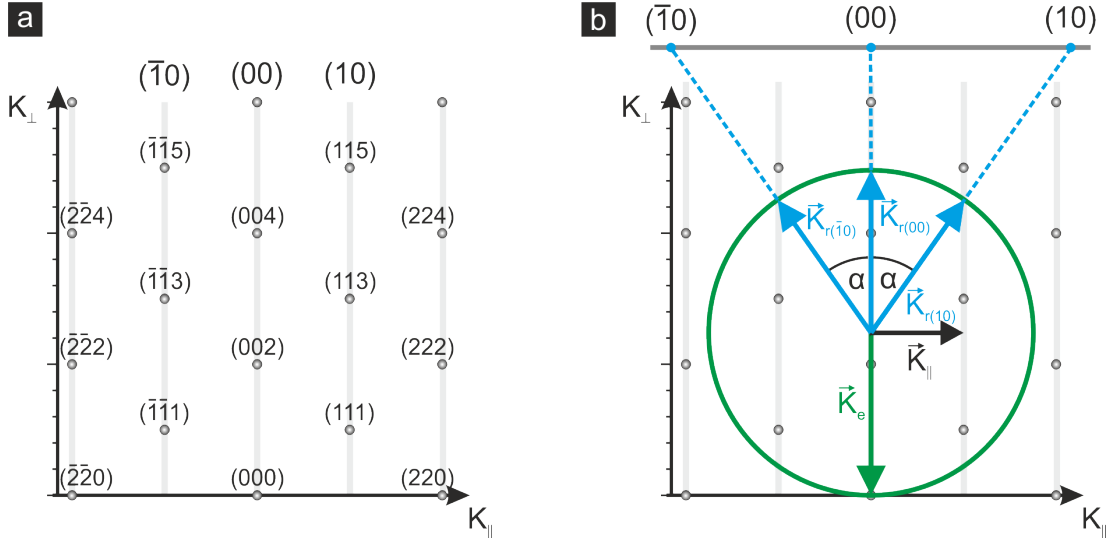


Abbildung 1.8: (a) Schematische Darstellung der Beugungsintensitätsverteilung im reziproken Raum für eine nicht fehlgeneigte Oberfläche. Da langsame Elektronen in guter Näherung nur Informationen über die Oberfläche, nicht aber über dazu senkrechte Periodizitäten liefern, ergeben sich keine scharfen Reflexe, sondern Stangen. (b) Ewaldkonstruktion für einen einfallenden Wellenvektor \vec{k}_e . Gestreute Wellenvektoren müssen am selben Fußpunkt beginnen und dieselbe Länge haben (Energieerhaltung). Zudem müssen sie auf einer Stange enden (Impulserhaltung). Ohne Vorwärtsstreuung führt dies, in dem skizzierten Fall, zu drei möglichen Wellenvektoren (blau). Diese bestimmen letztlich die Lage der Reflexe (hier auf einem planaren Schirm). Abbildung verändert entnommen aus [7].

1.3.2 Ewaldkonstruktion

Bisher wurde erläutert, wie es durch Beugung zu der Ausbildung von Intensitätsstangen im reziproken Raum kommt. Damit ist jedoch noch nicht erklärt, wie daraus letztlich die scharfen Reflexe in den gezeigten LEED-Bildern entstehen. Um das zu verstehen, hilft das Konzept der Ewaldkonstruktion [59, 58], welches auf der grafischen Anwendung von Energie- und Impulserhaltung beruht. Abbildung 1.8 (b) zeigt eine solche Konstruktion in zwei Dimensionen.

Der Wellenvektor der einfallenden Elektronenwelle kann nur an einer Stange gestreut werden und ist daher an einer solchen endend eingezeichnet. Aus Gründen der Energieerhaltung muss der Wellenvektor der (elastisch) gestreuten Elektronenwelle zum einen die selbe Länge haben wie vor dem Streuprozess, und zum anderen ebenfalls am Fußpunkt des einfallenden Wellenvektors beginnen. Daher ist es sinnvoll eine entsprechende Kugel, bzw. in zwei Dimensionen einen entsprechenden Kreis, um diesen Ursprung herum abzutragen. Der Zusammenhang

zwischen dem Radius dieser Ewaldkugel und der Elektronenenergie ist dann gegeben durch:

$$\left| \vec{k}_e \right| = \frac{2\pi}{\lambda} = \frac{2\pi\sqrt{2m_e e E}}{h} \iff E = \left| \vec{k}_e \right|^2 \frac{h^2}{8\pi^2 m_e e} \quad (1.13)$$

Weiterhin gilt die Impulserhaltung, was zur Folge hat, dass auch die gestreuten Wellenvektoren an einer Stange enden müssen. Unter der Annahme der Rückwärtsstreuung ergeben sich in dem Beispiel aus Abbildung 1.8 (b) demnach drei mögliche Wellenvektoren. Jede durch diese gestreuten Wellenvektoren beschriebene Elektronenwelle verlässt die Oberfläche unter einem anderen Winkel und erzeugt im Beugungsbild schließlich einen charakteristischen Reflex. Aus Abbildung 1.8 (b) ist zudem ersichtlich, dass sich bei einer Änderung der Elektronenenergie, auch die Größe der Ewaldkugel und damit der Winkel unter dem die gestreuten Elektronen die Oberfläche verlassen, ändert. Somit ist zu erwarten, dass sich auch die Positionen der Reflexe im LEED-Bild ändern. Bei der in dieser Arbeit verwendeten Methode der Abbildung solch eines Beugungsbildes im Niederenergie-Elektronenmikroskop (LEEM) werden die gebeugten Elektronen allerdings direkt vor der Probe durch die Objektivlinse auf 20 keV beschleunigt. Das kann durch ein Konzept der Elektronenbrechung an dem Linsenpotential berücksichtigt werden. Die genaue Rechnung soll an dieser Stelle nicht gezeigt werden, allerdings kürzt sich als Folge dessen die Elektronenenergie der gestreuten Wellenvektoren gerade heraus, sodass die Reflexe im LEED-Modus auch bei einer Änderung der Elektronenenergie ortsfest bleiben.

Kapitel 2

Experimenteller Aufbau

Dieses Kapitel soll eine Übersicht über die für diese Arbeit relevanten technischen Aufbauten und experimentellen Abläufen geben. Zunächst wird dabei kurz auf das gesamte Vakuumsystem eingegangen. Hauptteil dieses Systems bildet das LEEM, auf welches anschließend gesondert ausführlich eingegangen wird. Im weiteren Verlauf wird kurz das Verdampfersystem erläutert. Abschließend befasst sich der letzte Teil dieses Kapitels mit der Bestimmung der Proben temperatur, welche für die Aussagen dieser Arbeit von grundlegender Bedeutung ist.

2.1 Vakuumsystem

Fast alle in dieser Arbeit vorgestellten Experimente wurden in dem Ultrahochvakuumkammersystem durchgeführt, welches in Abbildung 2.1 gezeigt wird. Dieses System lässt sich grob in vier durch Ventile voneinander getrennte Komponenten unterteilen, die im Folgenden kurz erläutert werden.

Die **Schleuse** dient der Möglichkeit, Proben in das Mikroskop ein- und auszuschießen, ohne dabei das Ultrahochvakuum des Mikroskops brechen zu müssen. Mittels einer Membran- und einer Turbomolekularpumpe kann die Schleuse innerhalb weniger Minuten bis in den Bereich des Hochvakuums abgepumpt werden, sodass die Probe transferiert werden kann. Die eingeschleusten Proben können anschließend *in-situ* mit Hilfe eines Plasma-Reinigers gesäubert werden. Innerhalb des Schleusensystems befindet sich zudem eine Probengarage mit der Möglichkeit, zwei weitere Probenhalter aufzunehmen.

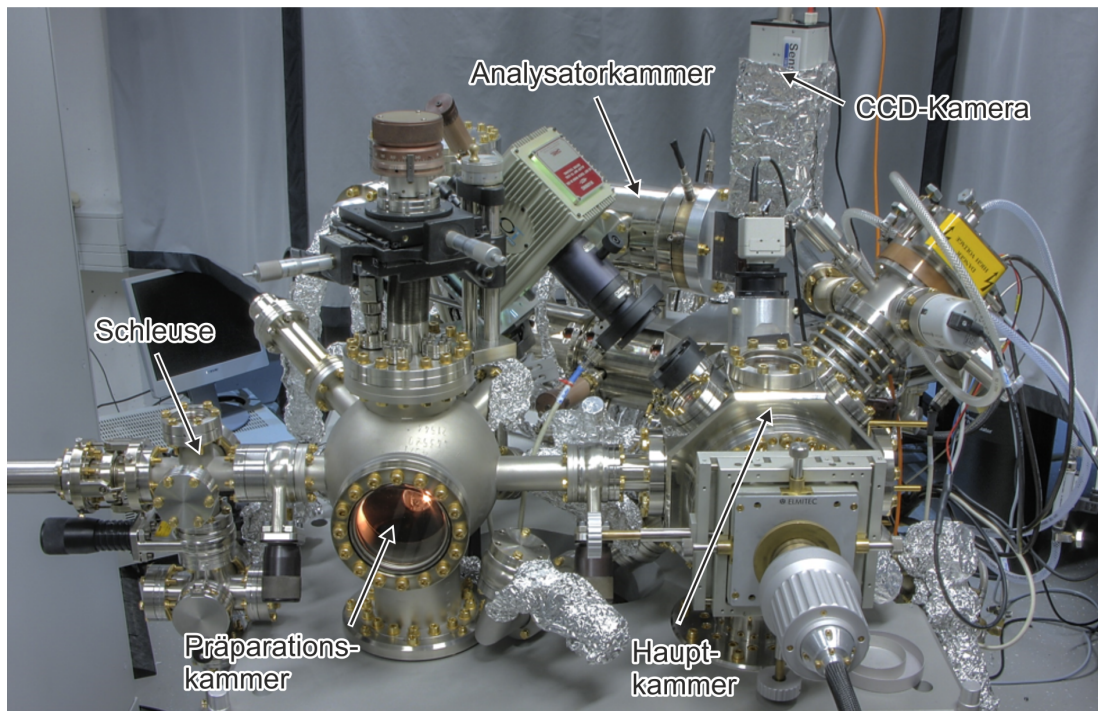


Abbildung 2.1: Übersichtsaufnahme des gesamten Vakuumsystems. Ganz links befindet sich die Schleuse und rechts daneben die Präparationskammer. In der rechten Bildhälfte ist die Hauptkammer mit dem Manipulator zu sehen. Das eigentliche LEEM mit dem 60° Sektorfeld befindet sich direkt dahinter. Im hinteren Bereich des Bildes ist noch Teil der Analysatorkammer zu erkennen, in dem sich der Großteil der Elektronenoptik befindet. An deren oberen Ende ist über eine 90° Spiegelkonstruktion die CCD-Kamera befestigt. Foto freundlicherweise zur Verfügung gestellt von Frank Meyer zu Heringdorf.

Als zweiter abgeschlossener Bereich besitzt die **Präparationskammer** ebenfalls eine Aufnahme für einen Probenhalter. Sie bietet allerdings, anders als die Probengarage, die Möglichkeit der elektrischen Kontaktierung des Probenhalters. Somit ist es beispielsweise möglich, die Probe mittels Elektronenstoßheizung zu erhitzen. Zudem befindet sich an dieser Kammer eine Ionenstrahlquelle, mit Hilfe derer die Probe gezielt mit Argon-Ionen gesputtert werden kann.

Rechts der Präparationskammer befindet sich die **Hauptkammer**, die einen wichtigen Teil des eigentlichen LEEMs darstellt. Die Probenhalteraufnahme befindet sich an einem Manipulator, mit dem es nicht nur möglich ist die Probe in x- und y-Richtung zu verschieben, sondern auch um diese beiden Richtungen zu verkippen (Probentilt), sodass die Probenoberfläche absolut parallel vor der Objektivlinse ausgerichtet werden kann. Letztere bildet den Abschluss der Hauptkammer. Zum Heizen der Probe und zur Bestimmung der Probentemperatur mittels ei-

nes Wolfram/Rhenium-Thermoelementes ist auch diese Probenhalteraufnahme, genau wie in der Präparationskammer, mit vier elektrischen Kontakten versehen. Um Experimente bei sehr niedrigen Temperaturen durchführen zu können, kann der gesamte Manipulator und damit auch die Probe mit Hilfe von flüssigem oder gasförmigem Stickstoff gekühlt werden. Zwei abtrennbare Anschlüsse an der Hauptkammer bieten die Möglichkeit, Verdampfer anzuflanschen und damit die Probe *in-situ* mit verschiedenen Materialien zu bedampfen.

Hinter der angesprochenen Objektivlinse, die sich noch in der Hauptkammer befindet, schließt direkt die **Analysatorkammer** an, die durch ein Ventil abtrennbar ist. Bis auf die Objektivlinse befindet sich die gesamte Elektronenoptik in der Analysatorkammer. Ebenso eine Elektronenquelle und ein hemisphärischer Analysator, der Namensgeber für diese Kammer ist. Im Wesentlichen handelt es sich bei dieser Kammer folglich um das eigentliche LEEM, welches im nächsten Abschnitt detaillierter behandelt wird.

2.2 LEEM

Elementarer Bestandteil der Vakuumapparatur und wichtigstes Messinstrument für die in dieser Arbeit vorgestellten Experimente ist das niederenergetische Elektronenmikroskop [60, 61, 62, 63, 64]. Langsame und damit entsprechend Abschnitt 1.3 oberflächensensitive Elektronen werden bei dieser Art des Mikroskops verwendet, um die Probenoberfläche abzubilden. Dazu werden zunächst 20 keV schnelle Elektronen kurz vor der Probe auf wenige Elektronenvolt abgebremst, sodass diese mit der Probenoberfläche besser wechselwirken können. Die reflektierten bzw. gebeugten Elektronen werden anschließend wieder mit einer Spannung von 20 kV zur Objektivlinse hin beschleunigt und im Abbildungsweig von magnetischen und elektrostatischen Linsen, Stigmatoren und Deflektoren abgelenkt und schließlich mit einer Vielkanalplatte (MCP) vervielfacht und auf einem Phosphorschirm abgebildet. Ein Sektorfeld separiert dabei den auf die Probe einfallenden von dem ausfallenden Elektronenstrahl. Bei dem für die Messungen in dieser Arbeit verwendeten Mikroskop handelt es sich um das Modell “SPE-LEEM III” der Firma ELMITEC. “SPE” steht dabei für “spectroscopic”, da sich vor dem Elektronenvervielfacher noch ein hemisphärischer Energieanalysator befindet, der zusätzlich zur Realraum- und Impulsraumabbildung der Elektronen auch energieaufgelöste sowie energieselektive Messungen ermöglicht. Der genaue optische

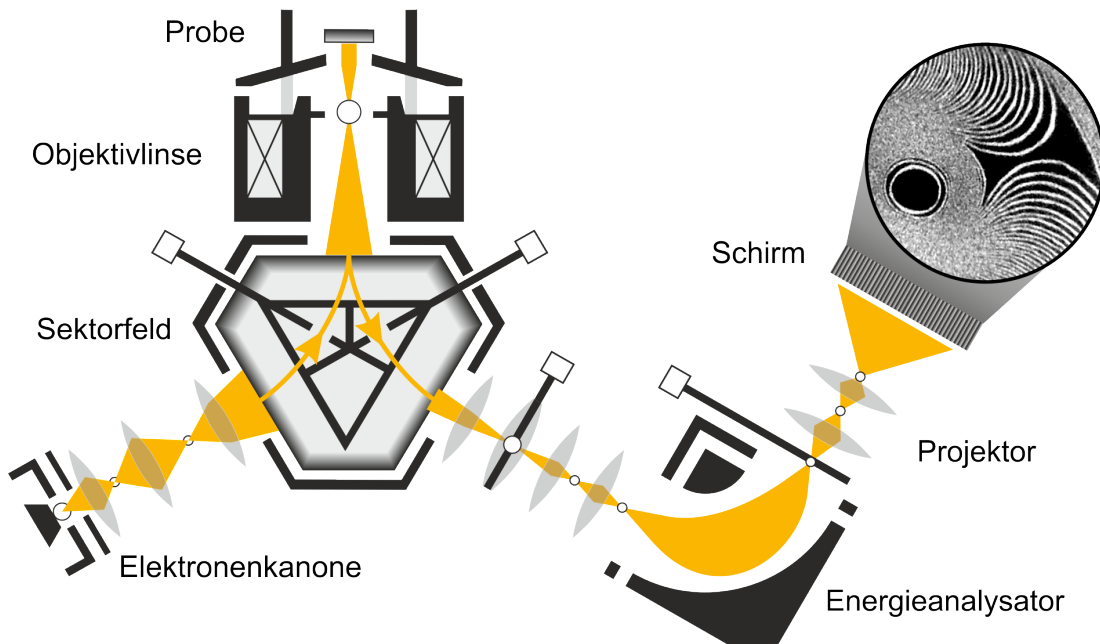


Abbildung 2.2: Schematische Zeichnung des LEEM mitsamt angedeutetem Strahlengang. Kernstück des Mikroskops ist das zentrale Sektorfeld, in dem der einkommende Elektronenstrahl um 60° abgelenkt und auf die Probe geleitet wird. Der mit der Probenoberfläche wechselgewirkte Strahl kommt anschließend auf dem selben Weg zurück und wird wieder im Sektorfeld um 60° abgelenkt. Einfallender und ausfallender Strahl können so separiert werden. Nach durchlaufen eines Energieanalysators wird der Strahl schließlich auf einem Schirm abgebildet und ein Bild entsteht. Abbildung in Anlehnung an [65] leicht verändert entnommen aus [66].

Aufbau dieses Mikroskops sowie die damit verbundenen, verschiedenen Möglichkeiten der Oberflächenabbildung werden im Folgenden näher beschrieben.

2.2.1 Realraumabbildung

Der genaue optische Aufbau und damit die genaue Funktionsweise so eines Mikroskops ist bedingt durch die vielen elektronenoptischen Elemente recht komplex. Als erstes wird daher die Abbildung des Realraums von der Oberfläche der Probe (OF in Abbildung 2.3) auf das Multichannel-Plate (MCP in Abbildung 2.3) erläutert. Dazu müssen allerdings zunächst die Möglichkeiten geklärt werden, die Oberfläche mit Elektronen abzubilden. Im einfachsten Fall wird die Oberfläche dafür mit einer externen Beleuchtungsquelle bestrahlt, sodass mit Hilfe des äußeren Photoeffekts [67] Elektronen aus der Oberfläche austreten können. Hierfür steht am Mikroskop unter anderem eine Quecksilberdampfampe mit einer maximalen Photonenenergie von 4,92 eV zur Verfügung. Diese Betriebsart des Mikroskops

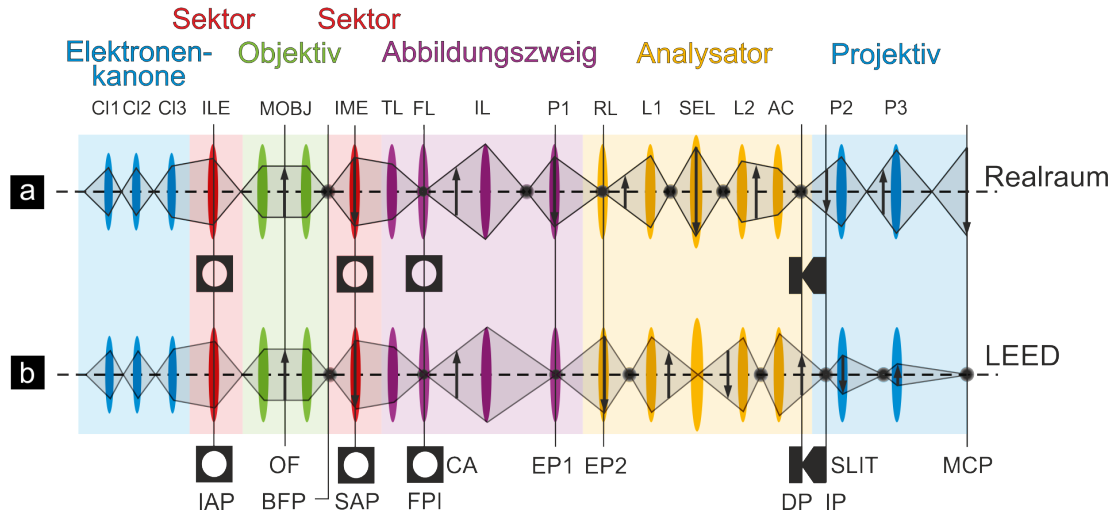


Abbildung 2.3: Skizze des Strahlengangs im LEEM. Abhängig von der Brennweite der ortsfesten Linsen kann entweder der Realraum (a) oder der LEED Ebene (b) abgebildet werden. Mit den beiden Teleskopen TL/FL und IL/P1 kann zum einen die Vergrößerung eingestellt werden und zum anderen auch Bild- und Beugungsebene unabhängig voneinander verschoben und damit zwischen diesen beiden Abbildungsmodi gewechselt werden. Ganz unten ist zudem die genaue Position der verbauten Blenden eingezeichnet. Abbildung in Anlehnung an [71]

wird als **PEEM** (Photoemissionselektronenmikroskopie) bezeichnet [68]. Die in Abbildung 2.3 gezeigte Elektronenoptik links der Oberfläche spielt dabei keine Rolle, da die Elektronen, die zur Abbildung verwendet werden, direkt aus eben dieser Oberfläche emittiert werden. Wichtig wird dieser, mit “Elektronenkanone” bezeichnete Teil, allerdings im eigentlichen **LEEM**-Abbildungsmodus. Dafür werden Elektronen thermisch aus einem Lanthanhexaborid-Emitter emittiert, auf 20 keV beschleunigt und der Elektronenstrahl schließlich mit den Linsen C1 bis C3 in den Sektor projiziert. Dieser besteht aus einer sogenannten dichtesten-Prisma-Anordnung [69, 70] und ist in einen inneren und einen äußeren Sektor aufgeteilt. Beide zusammen fungieren als magnetischer Deflektor und lenken die Elektronen um 60° in Richtung der Objektivlinse ab, die wiederum den Elektronenstrahl auf einen Bereich von etwa $40\text{ }\mu\text{m}$ Durchmesser auf der Oberfläche abbildet. Da die Elektronen durch das Probenpotential kurz vor der Oberfläche auf wenige Elektronenvolt abgebremst werden, können diese auf die in Kapitel 1.3.1 beschriebene Weise mit der Oberfläche wechselwirken und werden reflektiert bzw. gebeugt.

In beiden Fällen (PEEM und LEEM) werden die Elektronen anschließend auf 20 keV beschleunigt und im Sektor um 60° hin zum Abbildungsweig abgelenkt. Das reale Bild der Probe wird dabei mit der Objektivlinse in der Ventilebene

in IME abgebildet. Dahinter befindet sich die Transferoptik, die im Wesentlichen aus den beiden Teleskopen TL/FL und IL/P1 besteht. Somit kann nicht nur die Vergrößerung eingestellt (mit FL und IL), sondern auch die Bild- und Brennebene unabhängig voneinander verschoben werden. Für die Abbildung des Realraums wird die Bildebene dabei gerade in P1 projiziert. Es folgt der angesprochene Energieanalysator, in dem die Elektronen kurzfristig abgebremst werden, um einen guten Kompromiss aus Orts- und Energieauflösung zu erhalten [72]. Da in dieser Arbeit allerdings keine energieaufgelösten Messungen vorgestellt werden, wird auf diesen Analysator nicht detaillierter eingegangen. Hinter dem Analysator folgt das Projektiv, dessen Funktionsweise im Wesentlichen dem Okular bei einem Lichtmikroskop entspricht. Mit P2 und P3 kann die Endvergrößerung eingestellt und das reelle Bild schließlich auf das Multichannel-Plate abgebildet werden.

Wie bei lichtoptischen Elementen treten auch bei elektronenoptischen Linsen die bekannten Linsenfehler auf. Daher ist es wichtig, den Strahlengang auf der optischen Achse zu halten, was mit Hilfe diverser Deflektoren vor fast jeder in Abbildung 2.3 gezeigten Linse möglich ist. Beleuchtungs-, Objektiv-, Beugungs-, und Analysatorstigmatoren sorgen für die Korrektur der gravierendsten stigmatischen Linsenfehler. Zudem kann es notwendig sein, achsenferne Strahlen mit Hilfe von Blenden gezielt abzuschneiden, um ein besseres Bild zu erhalten. Solch eine Blende befindet sich beispielsweise schon im Sektorfeld auf der Seite der Elektronenkanone (Beleuchtungsblende = IAP). Mit dieser ist es möglich, die Größe des mit Elektronen “ausgeleuchteten” Bereichs auf der Oberfläche zu verändern. Eine weitere wichtige Blende ist die Kontrastblende (FPI), die sich in der Impulsraumbene in FL befindet. Auf diese Weise kann nicht nur eine Verbesserung der Bildschärfe erzielt werden, sondern es wird damit auch der für diese Arbeit wichtige Kontrastmechanismus der Dunkelfeldabbildung grundlegend erst ermöglicht, was im weiteren Verlauf noch detailliert erläutert werden wird.

2.2.2 Impulsraumabbildung

Auch die gerade erläuterte Realraumabbildung im LEEM-Modus mit niederenergetischen Elektronen basiert im Wesentlichen auf der beschriebenen Wechselwirkung der Elektronen mit der Oberfläche und ist damit, nach Kapitel 1.3, eine beugungsbasierte Abbildungsmethode. Die gestreuten Elektronen verlassen die Oberfläche in charakteristische Richtungen und mit charakteristischen Winkeln.

Diese Informationen sind in der Beugungsebene enthalten, die mittels IL entsprechend Abbildung 2.3 in P1 projiziert werden kann. Analysator und Projektiv werden anschließend wie bei der beschriebenen Realraumabbildung durchlaufen, sodass auf dem MCP schließlich ein Bild der Beugungsebene abgebildet wird. Dieser Abbildungsmodus wird entsprechend des sich ergebenden Bildes **LEED**-Modus genannt. Abbildung 2.4 (b) zeigt beispielhaft ein solches LEED-Bild einer sauberen Si(001)-Oberfläche für eine Elektronenenergie von 4,1 eV. Da dieser Abbildungsmodus nur Oberflächeninformationen des mit Elektronen “beleuchteten” Teils der Probe aufweist, kann mit Hilfe einer sehr kleinen Beleuchtungsblende (IAP) im Strahlengang, die Oberfläche selektiv bis hinunter zu einer Elektronenstrahlspotgröße von etwa 1 μm untersucht werden. Diese Abbildungsmethode wird dann als μ -LEED (Mikrometer-selektives LEED) bezeichnet.

2.2.3 LEEM-Abbildungsmethoden

Bisher wurde lediglich beschrieben, wie der Realraum mit dem Mikroskop abgebildet werden kann. Dabei wurde jedoch nicht erklärt, wie es überhaupt zu einer Intensitätsverteilung bei dem finalen Realraumbild kommt, welche ja überhaupt erst das Bild ausmacht. Da die Intensität des Bildes proportional zur Anzahl der Elektronen ist, müssen von verschiedenen Stellen der Oberfläche unterschiedlich viele Elektronen kommen (oder unterschiedlich miteinander interferieren) um einen Kontrast zu erhalten. Insgesamt gibt es eine Vielzahl an möglichen Abbildungsmethoden und Kontrastmechanismen, sowohl im PEEM, als auch im LEEM, die alle für die jeweils zu untersuchende Oberfläche besser oder schlechter geeignet sind. Gute Übersichten finden sich hierzu in der Literatur [73, 74], sodass sich nachfolgend im Wesentlichen auf den für diese Arbeit relevanten Dunkelfeld-Modus für eine Si(001)-Oberfläche beschränkt wird. Der Vollständigkeit halber soll zunächst jedoch kurz der Hellfeld-Modus erläutert werden.

2.2.3.1 Hellfeld-Modus

Bei dieser Methode wird zur Abbildung der Oberfläche nur der Spekularreflex genutzt. Das geschieht durch Auswahl eben dieses, in Abbildung 2.4 (b) gezeigten (00)-Reflexes mit der Kontrastblende. Dieser Modus entspricht der Fourierfilterung in der konventionellen Optik und alle zur Abbildung genutzten Elektronen kommen so senkrecht aus der Oberfläche. Um auf diese Weise auf einer gestuften

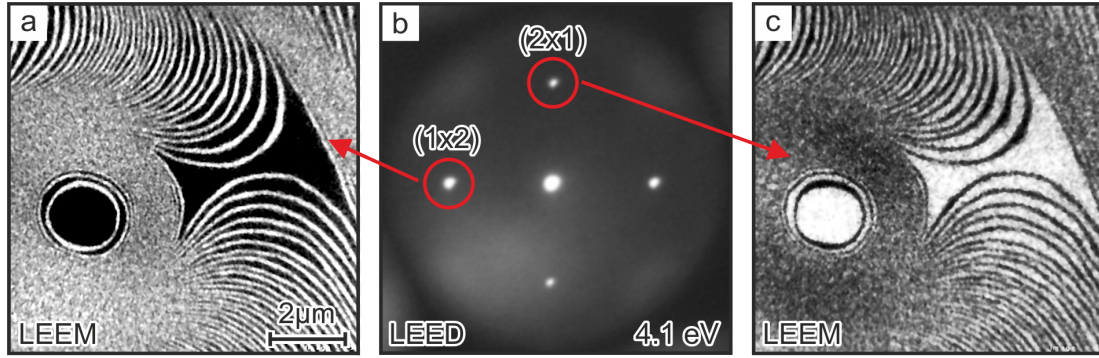


Abbildung 2.4: (b) LEED Bild einer sauberen Si(001)-Oberfläche bei 4,1 eV Elektronenenergie. Entsprechend der im Realraum um 90° gedrehten (2×1) - und (1×2) -Rekonstruktion, ergeben sich auch in der Beugungsebene für jeden Terrassentyp zwei dazu korrespondierende Spots. (a) Wird nur der (1×2) -Spots zur Abbildung des Realraums genutzt, so erscheint im LEEM nur der dazugehörige Terrassentyp hell und der andere dunkel. (c) Bei Wahl des anderen Spots zur Abbildung ergibt sich das zu (a) invertierte Bild.

Oberfläche Kontrast zu erzielen, ist es beispielsweise möglich, die Elektronenenergie so anzupassen, dass deren Wellenlänge genau dem Vierfachen der Stufenhöhe entspricht. Auf diese Weise wird im Bereich einer Stufe gerade ein Gangunterschied von $\lambda/2$ für die oben und unten an der Stufe reflektierten Elektronen erreicht, was zu einer destruktiven Interferenz führt. Dieser Kontrastmechanismus wird Phasenkontrast genannt und hat zur Folge, dass im Realraum-LEEM-Bild die Stufen auf diese Weise dunkel erscheinen.

Für die Si(001)-Oberfläche wären so zum Erreichen eines Phasenkontrastes entsprechend der Einzelstufenhöhe von $1,36 \text{ \AA}$ eine Elektronenenergie von mindestens 5,1 eV (erste Gegenphase; $S = 0,5$) nötig. Obwohl dieser Kontrastmechanismus angesichts der in dieser Arbeit angestrebten Untersuchung von Stufenbewegungen als gerade zu prädestiniert erscheint, wird damit hier nicht gearbeitet. Ein Grund dafür ist unter anderem der, dass die Phasen- und Gegenphasen-Bedingungen aufgrund der um 90° gedrehten Dimerrekonstruktion für Si(001) nicht ganz eindeutig sind [75]. Besser geeignet, weil noch kontrastreicher für die Si(001)-Oberfläche, ist der im Folgenden beschriebene Dunkelfeld-Modus, der daher für diese Arbeit auch die Abbildungsmethode der Wahl darstellt.

2.2.3.2 Dunkelfeld-Modus

Der für diese Arbeit verwendete Kontrastmechanismus ist der sogenannte Dunkelfeld-Modus. Hierfür wird mittels der Kontrastblende in der Beugungsebene eben nicht der Spekularreflex, sondern gezielt einer der anderen Reflexe zur Abbildung ausgewählt. Folglich erscheint im Realraumbild nur der Bereich der Oberfläche hell, von dem aus die Elektronen in dem jeweils entsprechenden Winkel gebeugt werden. Für die Si(001)-Oberfläche bieten sich dafür die beiden (1×2) - bzw. (2×1) -Reflexe an. Diese entstehen entsprechend der zwei in Kapitel 1.1.2 behandelten verschiedenen Rekonstruktionsdomänen der Si(001)-Oberfläche, bei denen zwischen jeder Stufe die Dimere bzw. die Dimerreihen jeweils um 90° gegeneinander gedreht sind. Daher sind die genannten Reflexe im LEED-Bild in Abbildung 2.4 (b) ebenfalls um 90° gedreht. Wird nun einer dieser Reflexe zur Abbildung verwendet, so entstehen die in Abbildung 2.4 (a) bzw. (c) gezeigten LEEM-Bilder. Für die Wahl des (1×2) -Reflexes erscheinen, wie in Abbildung 2.4 (a) zu sehen, auch nur die (1×2) -Terrassen hell, wohingegen die (2×1) -Terrassen dunkel erscheinen. Bei der Wahl des (2×1) -Reflexes erscheint das Bild dagegen vom Kontrast her invertiert. In Abbildung 2.4 (c) können also die “hellen” Bereiche als (2×1) -Oberflächenrekonstruktionen identifiziert werden. Zwischen einer “dunklen” und der benachbarten “hellen” Terrasse befindet sich gerade eine atomare Stufe. Auf die genaue Topographie des gezeigten Ausschnitts der Oberfläche wird später im Detail eingegangen. Zusammenfassend ist zu sagen, dass der LEEM-Dunkelfeld-Modus aufgrund der Rekonstruktionsdomänen insbesondere für die Si(001)-Oberfläche optimal geeignet ist, um die Bewegung atomar hoher Stufen in Echtzeit und bei hohen Temperaturen zu untersuchen. Daher wird fast ausschließlich diese Methodik für die in dieser Arbeit vorgestellten Experimente verwendet. Obwohl die entsprechenden Bereiche lediglich im Bild “hell” und “dunkel” bzw. “weiß” und “schwarz” erscheinen, es aber in der Realität natürlich nicht sind, wird im Folgenden, aus Gründen eines besseren Leseflusses, dennoch ganz bewusst auf die Verwendung der Anführungszeichen verzichtet.

2.3 Probenpräparation

Für alle Experimente in der Oberflächenphysik ist eine saubere Probenoberfläche mit definierten Strukturen von elementarer Bedeutung. Im Folgenden werden kurz die verwendeten Proben sowie die Reinigungsprozedur dieser beschrieben. Anschließend soll das verwendete Verdampfersystem und dessen Möglichkeiten und Grenzen erläutert werden.

2.3.1 Silizium Proben

Für die meisten in dieser Arbeit gezeigten Experimente wurden kommerzielle Si(001)-Proben der Firma Crystec verwendet. Diese haben eine Größe von $10\text{ mm} \times 10\text{ mm}$ bei einer Dicke von $525\text{ }\mu\text{m}$ und einer Bor-Dotierung von unter $2 \times 10^{12}\text{ Atome/cm}^3$. Experimente bestätigten die angegebene Fehlneigung dieser Probencharge von unter $0,2^\circ$. Für einige in Kapitel 4 gezeigte Experimente wurden zudem Si(001)-Wafer der Firma Philips verwendet und ebenfalls in $10\text{ mm} \times 10\text{ mm}$ große Proben geschnitten. Bei einer Dicke von $500\text{ }\mu\text{m}$ bis $550\text{ }\mu\text{m}$ und einer Dotierung von $8\text{ }\Omega\text{cm}$ bis $12\text{ }\Omega\text{cm}$ zeichnen sich diese Proben insbesondere durch eine extrem gute Orientierung mit einer experimentell bestimmten Fehlneigung von nur etwa $0,02\%$ aus. Da letzterer Wert für die Fehlneigung aber lediglich aus der Anzahl der Stufen pro Länge bestimmt worden ist, sich bei solch wohlorientierten Si(001)-Oberflächen entsprechend Kapitel 1.1.2 jedoch auch spontan Aufwärts- und Abwärts-Stufen bilden, die eben nicht nur die Fehlneigung kompensieren, ist davon auszugehen, dass die wirkliche Fehlneigung dieser Probencharge noch deutlich unter diesem Wert liegt.

Alle Proben wurden zunächst mit Aceton und Isopropanol gereinigt, anschließend in den Probenhalter eingebaut und ins Vakuum transferiert. Daraufhin wurden die Proben zum Ausgasen für mindestens 4 Stunden, auf etwa 700°C bis 800°C geheizt. Um das native Siliziumoxid zu entfernen, unter der sich die definierte (001)-Oberfläche befindet, wurden die Proben schließlich mehrfach für etwa 10 s bis 12 s bis auf etwa 1250°C erhitzt (Flash-Annealing Prozedur). Auf diese Weise war es möglich eine saubere (001)-Oberfläche zu erhalten, die eine Kontaminationsdichte von bestenfalls nur noch etwa $1/\text{mm}^2$ aufweist.

2.3.2 Verdampfersystem

In Kapitel 4 dieser Arbeit wird über den Einfluss von Gold-Deposition auf die Ergebnisse aus Kapitel 3 berichtet. Um dafür experimentell *in-situ* Gold auf die saubere Silizium Oberfläche aufbringen zu können, steht an der Hauptkammer ein Goldverdampfer zur Verfügung. Dieser wassergekühlte Verdampfer beruht, genau wie die Probenheizung, auf dem Prinzip der Elektronenstoßheizung. Die Abbildung 2.5 (a) zeigt eine schematische Darstellung des genutzten Verdampfers [76]. Goldmaterial mit einer Reinheit von 99,999% befindet sich in einem Tantaltiegel, um dessen obere Kante kontaktfrei ein Wolframfilament gewickelt ist. Zwischen Tiegel und Filament wird eine Hochspannung von 1000 V angelegt, sodass aus dem Filament emittierte Elektronen zum Tiegel hin beschleunigt werden und diesen durch Stöße heizen. Auf diese Weise wurden in den gezeigten Experimenten Leistungen bis zu etwa 250 W in den Tiegel deponiert. Dieser Wert entspricht dabei auch konstruktionsbedingt der maximal möglichen Leistung des Verdampfers. Ein oberhalb des Kühlkörpers montierter Shutter erlaubt es, die Deposition von Außen gezielt zu starten oder zu stoppen. Somit ist es möglich, die Probe vor den undefinierten Phasen des Aufheizens bzw. Abkühlens des Verdampfers zu schützen und auf diese Weise kontrolliert Gold mit einer konstanten Rate zu deponieren.

2.4 Temperaturmessung

Essenziell für die Ergebnisse dieser Arbeit ist eine möglichst genaue Bestimmung der Proben temperatur in einem Temperaturbereich von 750°C bis 1200°C. Eine Möglichkeit die Temperatur zu messen ist die mittels eines Thermoelementes in Kontakt zur Probe. Der verwendete Probenhalter des Mikroskops besitzt dafür, neben den beiden Kontakten für die Probenheizung, auch solche für ein Wolfram/Rhenium-Thermoelement, welches die Temperatur direkt an der Auflagefläche der Proben misst. Eine so ermittelte Thermospannung kann dann in die Temperatur umgerechnet werden. Problematisch an dieser Methode ist allerdings, dass die Kontakte zwischen Probenhalter und Manipulator beim Letzteren aus Kupfer-Beryllium bestehen und die Übergangswiderstände erst nach einem so langen Zeitraum thermalisiert wären, wie er im Experimentierbetrieb praktisch nie erreicht wurde. Zudem wird die Temperatur nicht direkt am zu untersuchen-

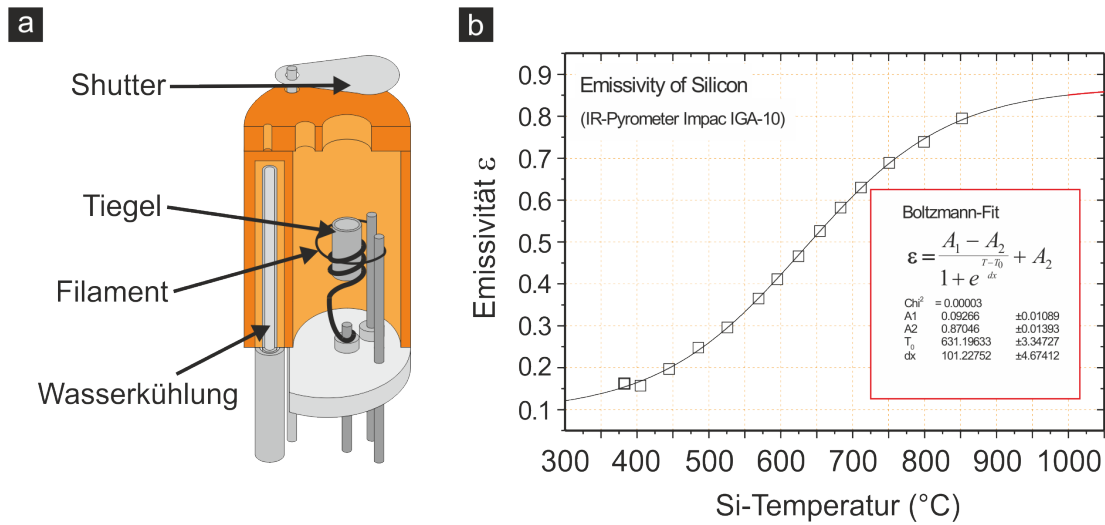


Abbildung 2.5: (a) Schematischer Aufbau des verwendeten Goldverdampfers nach [76]. Das Material befindet sich in einem Tantaltiegel und wird nach dem Prinzip der Elektronenstoßheizung verdampft. (b) Emissivität von Silizium als Funktion der Temperatur. Die durchgezogene Linie entspricht einem Boltzmann-Fit. Die Präzision dieser Kalibrationskurve ist im Rahmen dieser Arbeit mit dem verwendeten Pyrometer auf $<10^\circ\text{C}$ verifiziert worden. Abbildung verändert entnommen aus [77].

den Bereich auf der Oberfläche gemessen, sondern in einigen Millimetern Entfernung. Insbesondere schnelles Aufheizen und Abkühlen der Probe, aber auch die Geometrie der Elektronenstoßheizung selbst, lässt einen deutlichen Temperaturgradienten auf der Probe entstehen [7]. Insgesamt können die genannten Gründe einen systematischen Fehler bei dieser Art der Temperaturmessung von einigen 100 K zur Folge haben.

Daher erfolgt die Temperaturmessung in dieser Arbeit optisch über ein Infrarotpyrometer der Firma IMPAC. Dieses besitzt einen Messbereich von 300°C bis 1300°C bei einer Messgenauigkeit von etwa 1°C [78]. Der Arbeitsabstand dieses Pyrometers beträgt 680 mm bei einer Spotgröße des Messbereichs von 2 mm. Die Temperaturablesung erfolgt entweder direkt am Pyrometer oder über eine RS232-Schnittstelle am Computer. Um mit einem solchen Pyrometer die Temperatur einer Silizium Oberfläche möglichst genau bestimmen zu können, muss die am Pyrometer einstellbare Emissivität von Silizium in Abhängigkeit von der Temperatur bekannt sein. Solch eine Temperaturabhängigkeit wurde mit dem verwendeten Pyrometer in der Arbeit von R. Hild [77] bestimmt. Das Ergebnis und der entsprechende Boltzmann-Fit sind in Abbildung 2.5 (b) zu sehen. Die Genauigkeit der gezeigten Kurve wurde im Rahmen dieser Arbeit anhand des

(1×1)-(7×7)-Phasenübergangs der Si(111)-Oberfläche bei 1140 K (etwa 887°C) [79, 80] verifiziert und auf <10 K bestimmt. Entsprechend dient diese Kurve als Grundlage aller in dieser Arbeit angegebenen Temperaturen. Neben den diskutierten Punkten treten auch noch Fehler aufgrund der Infrarotdurchlässigkeit von Silizium (bei Temperaturen in dieser Arbeit von über 800°C vernachlässigbar) und durch den Wechsel des UHV-Fensters während dieser Arbeit auf. Messungen an dem Fenster mit einem Schwarzkörperstrahler ergaben eine konstante Abweichung in der Temperaturbestimmung von etwa 10 K nach unten, sodass letzterer Punkt gut abgeschätzt werden kann. Unter Berücksichtigung des weiterhin vorhandenen Temperaturgradienten auf der Probe, sollte insgesamt daher von einer Genauigkeit für die in dieser Arbeit angegebenen Temperaturen von etwa ± 50 K/ ± 40 K ausgegangen werden können.

Kapitel 3

Zerfall isolierter Hügel und Sättel auf Si(001)

3.1 Einleitung und Motivation

Wie in Kapitel 1.1.2 bereits ausgeführt wurde, neigen wenig fehlgeneigte Si(001)-Oberflächen dazu, von sich aus leicht aufzurauen. Insbesondere kommt es bei einer Fehlneigung unter $0,03^\circ$ durch die Bildung von geschlossenen Stufen, die sowohl als Inseln, aber auch als Löcher vorkommen können, zu einem Glatt/Rau-Phasenübergang der Oberfläche [23]. Eine ähnlich raue Ausbildung der Oberflächentopographie kann für Si(001) weiterhin während der Sublimation von Siliziumatomen bei sehr hohen Temperaturen beobachtet werden [81]. Der Grund dafür ist hinreichend in Kapitel 1.2.2 durch den Aufrauungsphasenübergang oberhalb von T_R beschrieben und erklärt worden. Eine solche Aufrauung der Oberfläche findet jedoch ebenso im umgekehrten Fall des homoepitaktischen Wachstums auf der Si(001)-Oberfläche statt und ist in mehreren Arbeiten experimentell beobachtet und beschrieben worden [82, 83].

Aufgrund dieser Vielzahl an unterschiedlichen Aufrauungsprozessen von Si(001), ist es von besonderem Interesse, die Eigenschaften der gebildeten Inseln genauer zu untersuchen. Insbesondere stellt sich im Falle von Inseln, die deutlich höher als nur wenige Monolagen sind (Hügel) auch die Frage, ob es eine Möglichkeit gibt die Oberfläche wieder zu glätten. Solche Hügel entstehen beispielsweise immer während der Probenpräparation mittels der in Abschnitt 2.3.1 beschriebenen

Standard “Flash-Annealing”-Prozedur durch die Sublimation von Silizium rund um eine isolierte Kontamination auf der Oberfläche. Der genaue Prozess dieser Entstehung wird im folgenden Abschnitt erläutert. Die Anzahl und die Höhe dieser Hügel hängen dabei stark von der Präparation der Probe sowie von den Vakuumbedingungen ab. Im Falle von einer hohen Kontaminationsdichte führt die “Flash-Annealing” Prozedur zu der Bildung ebenso vieler hoher Hügel und damit zu einer extrem rauen Oberfläche, die sogar optisch milchig erscheint [61] und daher auch als “Milchige Phase” bezeichnet wird. Solche Proben sind natürlich für weitere Anwendungen nicht zu gebrauchen. Aber auch schon eine sehr geringe Hügeldichte kann schlimmstenfalls in hochindustrialisierten Prozessen der Halbleiterindustrie zum kompletten Ausfall des entsprechenden Silizium-Wafers führen.

In diesem Kapitel wird sich daher mit der Frage beschäftigt, ob es nur durch Veränderung der Temperatur möglich ist, solche Hügel ganz gezielt zu erhöhen bzw. zu schrumpfen. Es wird gezeigt werden, dass es selbst bei sehr hohen Temperaturen nicht möglich ist, diese Hügel weiter zu erhöhen. Etwas tiefere Temperaturen führen allerdings zu einem Schrumpfen der Hügel, sodass es damit auch möglich ist, die Oberfläche wieder in den Ursprungszustand zu versetzen und damit zu glätten.

3.2 Entstehung von Hügeln und Sätteln

3.2.1 Prinzipieller Mechanismus der Hügelbildung

Nach der in Kapitel 2.3.1 beschriebenen Probenpräparation wird zunächst die Oberfläche nach einzelnen und isolierten Kontaminationen abgesucht. Bei den beobachteten Kontaminationen wird es sich in den meisten Fällen vermutlich um Silizium-Carbide handeln. Dies ist jedoch nicht final untersucht worden und soll auch nicht Bestandteil dieser Arbeit sein, da die Art der Kontamination für die Beobachtungen und Aussagen der weiteren Experimente nicht von Belang ist. Abbildung 3.1 (a) zeigt die Skizze einer vizinalen Si(001)-Oberfläche mit einer solchen Kontamination in der Mitte. Die einzelnen Terrassen sind in verschiedenen Graustufen abgesetzt und jeweils durch eine Einzelstufe voneinander getrennt. Dabei geht es von dunkel nach hell topographisch nach oben. Diese Aufwärtsrich-

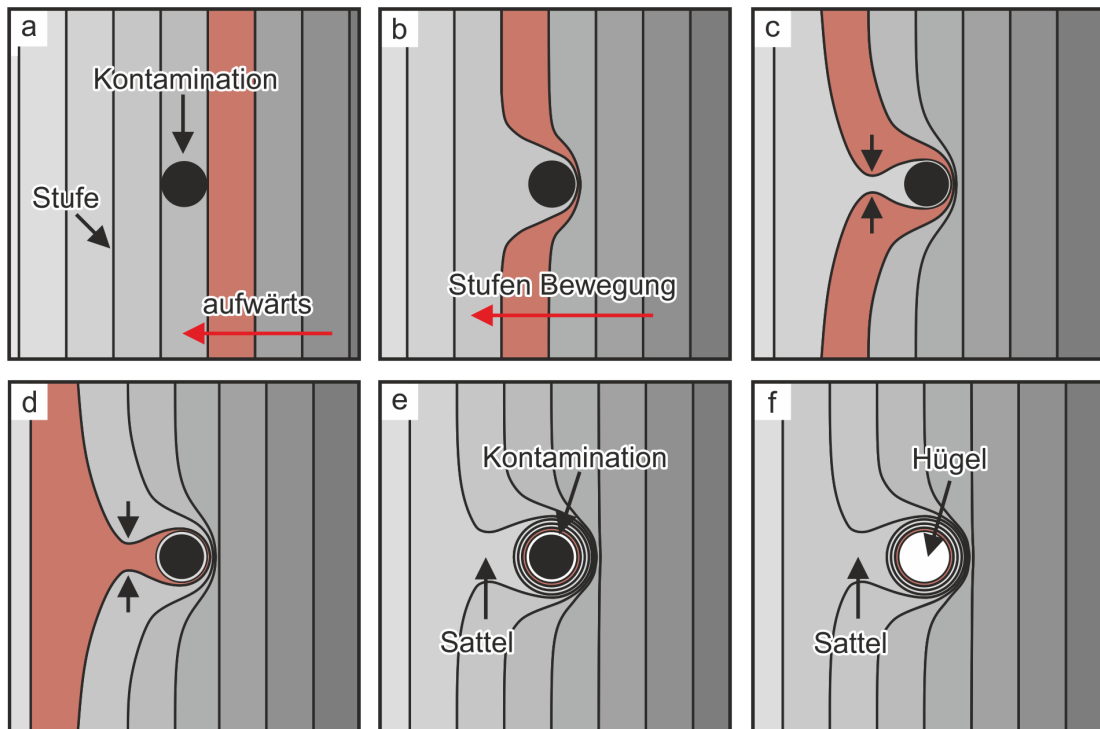


Abbildung 3.1: (a) Schematische Darstellung der Stufen auf einer vizinalen $\text{Si}(001)$ -Oberfläche mit einer Kontamination in der Mitte. (b) - (d) Illustrierung der Stufenbewegung bei hohen Temperaturen. Aufgrund der Desorption von Silizium kommt es zu einer Nettobewegung in Aufwärtsrichtung. Die Kontamination blockt die Stufenbewegung, sodass sich die Stufen um diese herum wickeln. Zur besseren Verdeutlichung dieser Bewegung ist eine Terrasse rötlich dargestellt. (e) Nach einiger Zeit haben sich einige Stufen um die Kontamination gewickelt und es ist ein Hügel darunter entstanden. (f) Extrem hohes “Flash-Annealing” der Probe kann in den meisten Fällen die Kontamination entfernen. Zurück bleibt ein atomar sauberer Hügel, wobei die Stufenmorphologie in der Umgebung erhalten bleibt.

tung ist zusätzlich noch durch den roten Pfeil gekennzeichnet. Eine der Terrassen ist in der Skizze zudem rot eingefärbt, um im Folgenden die Stufenbewegung auf der Oberfläche als Funktion der Zeit besser verdeutlichen zu können.

Wird die Probe jetzt soweit erhitzt, dass die Oberfläche zu desorbieren beginnt, ist im LEEM eine Nettobewegung der Stufen in Aufwärtsrichtung zu beobachten. Diese Bewegung erklärt sich durch die Tatsache, dass sich noch unterhalb der Aufrauungstemperatur Atome von den Stufenkanten lösen und anschließend von der unteren Terrasse desorbieren. Unter der Kontamination kann hingegen kein Material desorbieren, sodass diese als sogenanntes “Pinning”-Zentrum für die Stufen fungiert. Diese Situation ist in Abbildung 3.1 (b) gezeigt. Die Stufenbewegung wird von der Kontamination gestoppt, sodass sich in Folge dessen die Stufen dar-

um herum wickeln. Hinter der Kontamination kommt es schließlich zum Kontakt der “gepinnten” Stufe, die sich beidseitig um die Kontamination herum bewegt hat. Die Pfeile in den Abbildungen 3.1 (c) und (d) illustrieren genau diesen Vorgang. Als Konsequenz kann sich die Stufe oberhalb der Kontamination wieder ungehindert bewegen und unter der Kontamination hat sich ein Hügel gebildet, der mit jeder weiteren herum gewickelten Stufe um eine atomare Lage wächst. Abbildung 3.1 (e) zeigt die Situation nach mehreren dieser beschriebenen Zyklen. Die rot dargestellte Terrasse ist in dieser Skizze bereits nach links verschwunden und nur noch als eine der Hügellagen unter der Kontamination zu erkennen. Nach Reduzierung der Temperatur ist topographisch oberhalb der Kontamination ein mitunter ausgedehnter Sattel entstanden. Solche Sättel sind bereits in den Arbeiten von Mundschau et al. [84] und Bauer [85] als Grundlage für weiterführende Experimente genutzt worden. Daher ist auch der geschilderte Mechanismus dieser Hügel- und Sättelbildung teilweise schon in den genannten Arbeiten beschrieben worden.

In dieser Arbeit wird allerdings noch einen Schritt weiter gegangen. Nach Wachsen des Hügels auf die gewünschte Höhe wird die Temperatur der Probe schlagartig auf etwa 1250°C erhöht und für etwa 15 Sekunden, und damit etwas länger als bei der üblichen Flash-Annealing Prozedur, gehalten. Anschließend ist der Hügel zwar um weitere Lagen gewachsen, aber in den meisten Fällen die Kontamination auch verschwunden. Falls nicht wurde versucht, diese Prozedur bei noch höheren Temperaturen bzw. für einige Sekunden länger zu wiederholen. Ob die Kontamination ebenfalls desorbiert ist oder vielleicht auch im Silizium gelöst wurde, kann nicht mit Sicherheit gesagt werden, soll aber auch nicht Thema dieser Arbeit sein. Übrig bleibt in jedem Fall ein Hügel, dessen oberste Terrasse, wie in Abbildung 3.1 (f) skizziert, atomar sauber ist.

3.2.2 Hügel und Sättel im LEEM

Abbildung 3.2 (a) zeigt einen auf diese Weise präparierten Hügel im LEEM Dunkelfeld-Modus bei etwa 920°C. Die Entstehung solcher Bilder mit den charakteristischen hellen und dunklen Bereichen ist in Kapitel 2.2.3.2 erläutert worden. Deutlich ist die oberste, nach Entfernung der Kontamination nun saubere, weiße Terrasse zu identifizieren. Auf dem Bild ist ebenfalls gut der Sattel zu erkennen, an dem die Stufen hinter dem Hügel zusammenlaufen. Zwischen Sattel und Hügel sowie um den Hügel herum liegen die Stufen teilweise so eng beieinander, dass sie im LEEM nicht mehr aufgelöst werden können. Dieser Bereich erscheint in Folge dessen gräulich. Dennoch kann die lokale Fehlneigung selbst hier noch immer unter 4° abgeschätzt werden, sodass es sich entsprechend Abschnitt 1.1.2 im Wesentlichen weiterhin um Einzelstufen handelt. Die Abbildung zeigt einen Hügel typischer Größe, dessen oberste Terrasse im Durchmesser in der Größenordnung von wenigen Mikrometern liegt. Ebenfalls ist auch die leicht elliptische Form der obersten atomaren Lage zu erkennen. Diese typische Form einer geschlossenen, isolierten Terrasse auf der Si(001)-Oberfläche ist bereits in früheren Arbeiten beobachtet und diskutiert worden [86, 87, 88] und beruht im Wesentlichen auf der Anisotropie der in Abschnitt 1.2.1.5 eingeführten Stufensteifigkeit $\tilde{\gamma}(\theta)$. Die Anisotropie wiederum basiert grundsätzlich auf der Ausbildung der Dimere und Dimerreihen, sodass die Ausrichtung der Hauptachsen der elliptischen Terrasse auf dem Hügel Rückschlüsse auf die Richtungen der Dimerreihen zulässt. Diese verlaufen dabei immer längs der langen Achse der Ellipse, wohingegen die Dimere entlang der kurzen Achse der Ellipse verlaufen [51, 86].

In dem gezeigten Bild kann das Aspektverhältnis von kurzer zu langer Hauptachse der obersten beiden elliptischen Terrassen zu etwa 0,71 (schwarze Terrasse) bzw. 0,59 (weiße Terrasse) bestimmt werden. Diese Ergebnisse sind für die entsprechende Temperatur von etwa 920°C in guter Übereinstimmung mit den Werten 0,7 bis 0,8 aus REM-Messungen [90, 81] bzw. 0,55 aus früheren LEEM-Messungen [51]. Darüber hinaus entspricht dieses Aspektverhältnis gerade dem Verhältnis γ_A/γ_B der nach Abschnitt 1.2.1.4 anisotropen Linienspannung von S_A - zu S_B -Stufen. Dieses stimmt folglich ebenfalls gut mit den Werten aus der Arbeit von Bartelt et al. überein [51].

Die Abbildungen 3.2 (b) und (c) dienen der Verdeutlichung dieser Topographie aus Hügel und Sattel. Wie bei asiatischen Reisterrassen besteht eine gestufte

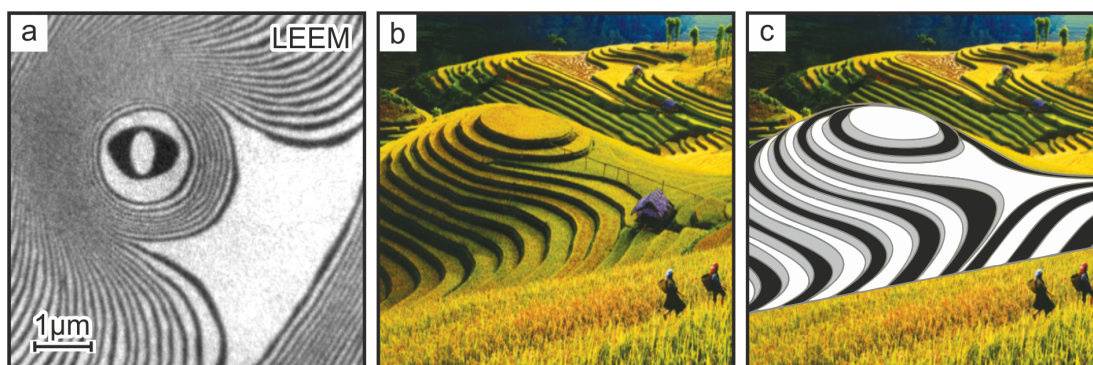


Abbildung 3.2: (a) Dunkelfeld-LEEM Bild eines sauberen Si-Hügels. In weiß ist deutlich die oberste Terrasse des Hügels sowie ein ausgedehnter Sattel zu erkennen. Die Stufenmorphologie um den Hügel herum ist im Vergleich zur Situation vor Entfernung der Kontamination unverändert. (b) und (c) Die Topographie rund um einen solchen Hügel kann gut mit Hilfe von typisch asiatischen Reisterrassen veranschaulicht werden. Im Dunkelfeld-LEEM erscheinen die Terrassen dann abwechselnd schwarz und weiß. Foto aus [89] freundlicherweise zur Verfügung gestellt von Nguyen Huy Son.

Si(001)-Oberfläche aus ebenen Terrassen gleicher Höhe, die durch Stufen diskreter (monoatomarer) Höhe voneinander getrennt sind. Im Dunkelfeld-LEEM erscheinen diese Terrassen dann abwechselnd schwarz und weiß. In der Umgebung eines Hügels zeigt dieser Vergleich auch gut, in welche Richtungen es topographisch aufwärts bzw. abwärts geht. Vom Hügel in Richtung Sattel geht es zunächst abwärts und ab dem Sattel dann in die dem Hügel abgewandte Richtung wieder aufwärts. Senkrecht zu dieser Achse geht es vom Sattel aus in beide Richtungen stets abwärts.

Die Oberflächenmorphologie rund um den in Abbildung 3.2 gezeigten Hügel hat sich mit Entfernen der Kontamination qualitativ nicht signifikant verändert. Auch die Stufenkinetik bei hohen Temperaturen ist unverändert, da der Hügel jetzt selbst als “Pinning”-Zentrum fungiert und sich so die Stufen weiterhin um diesen herum wickeln können. Am Sattel laufen diese Stufen schließlich zusammen, sodass dieser um eine atomare Lage schrumpft und der Hügel daher effektiv um die selbe atomare Lage wächst. Zudem kann jetzt oben auf dem Hügel ebenfalls Material desorbieren, was zu einem Schrumpfen des Hügels führen würde. Eben gerade das Gleichgewicht aus diesen beiden Prozessen als Funktion von Zeit und Temperatur ist nun Gegenstand der Untersuchung und soll Thema dieses Kapitels sein.

3.3 Zerfall der Hügellandschaft

3.3.1 Zeitlicher Verlauf des Zerfalls

Die Abbildung 3.3 zeigt eine zeitliche Abfolge von LEEM-Bildern eines solchen eben diskutierten Hügels zusammen mit dessen Sattel. Die Oberflächentemperatur ist für diese Bilderserie auf 1010°C bestimmt worden und die Zeitdifferenz zwischen den Bildern beträgt jeweils 8 s. Diese Bilderserie zeigt beispielhaft eines der fundamentalen Experimente dieser Arbeit, welches auf verschiedenen Proben und für unterschiedliche Temperaturen durchgeführt wurde. Es ist deutlich zu erkennen, dass der Hügel im Laufe der Zeit Lage für Lage zerfällt und damit an Höhe verliert. Dabei wechselt sich immer eine in der Abbildung weiß erscheinende und eine schwarz erscheinende Terrasse als jeweils oberste ab. Diese Erscheinung ist, wie in Kapitel 2.2.3.2 gezeigt, allerdings völlig willkürlich und hängt lediglich von der Wahl des LEED Spots ab, der zur Dunkelfeld-Abbildung genutzt wird. Außerdem dreht sich mit jeder zerfallenen Lage die Hauptachse der elliptischen Terrasse um 90°. Da die Ausrichtung dieser Hauptachse allerdings mit der Ausrichtung der Dimerreihen korreliert und diese sich wie in Abschnitt 1.1.2 beschrieben ebenfalls von Lage zu Lage um 90° drehen, ist diese Beobachtung nicht weiter verwunderlich.

Bei Betrachtung des Sattelpunktes fällt auf, dass auch dieser im Laufe der Zeit Lage für Lage zerfällt, d.h. sich ebenfalls weiße und schwarze Terrassen als jeweils oberste abwechseln. Ein Vergleich mit dem Hügel zeigt allerdings, dass dieser deutlich schneller durch den eigenen Zerfall an Höhe verliert, wie er durch den Zerfall des Sattels an Höhe gewinnt. Effektiv wird der Hügel folglich bei dieser Temperatur mit der Zeit schrumpfen. In den gesamten 88 s dieser gezeigten Bildfolge (a) bis (l) zerfallen auf dem Hügel insgesamt vier atomare Lagen. Am Sattelpunkt laufen die Stufen jedoch nur zweimal zusammen, sodass dort auch in der gesamten Zeit nur zwei atomare Lagen zerfallen. Der Hügel schrumpft also in der gezeigten Bilderserie am Gipfel doppelt so schnell, wie er am Fußpunkt zum Sattel wächst. Diese Beobachtung soll im Folgenden für verschiedene Temperaturen verifiziert und genauer diskutiert werden.

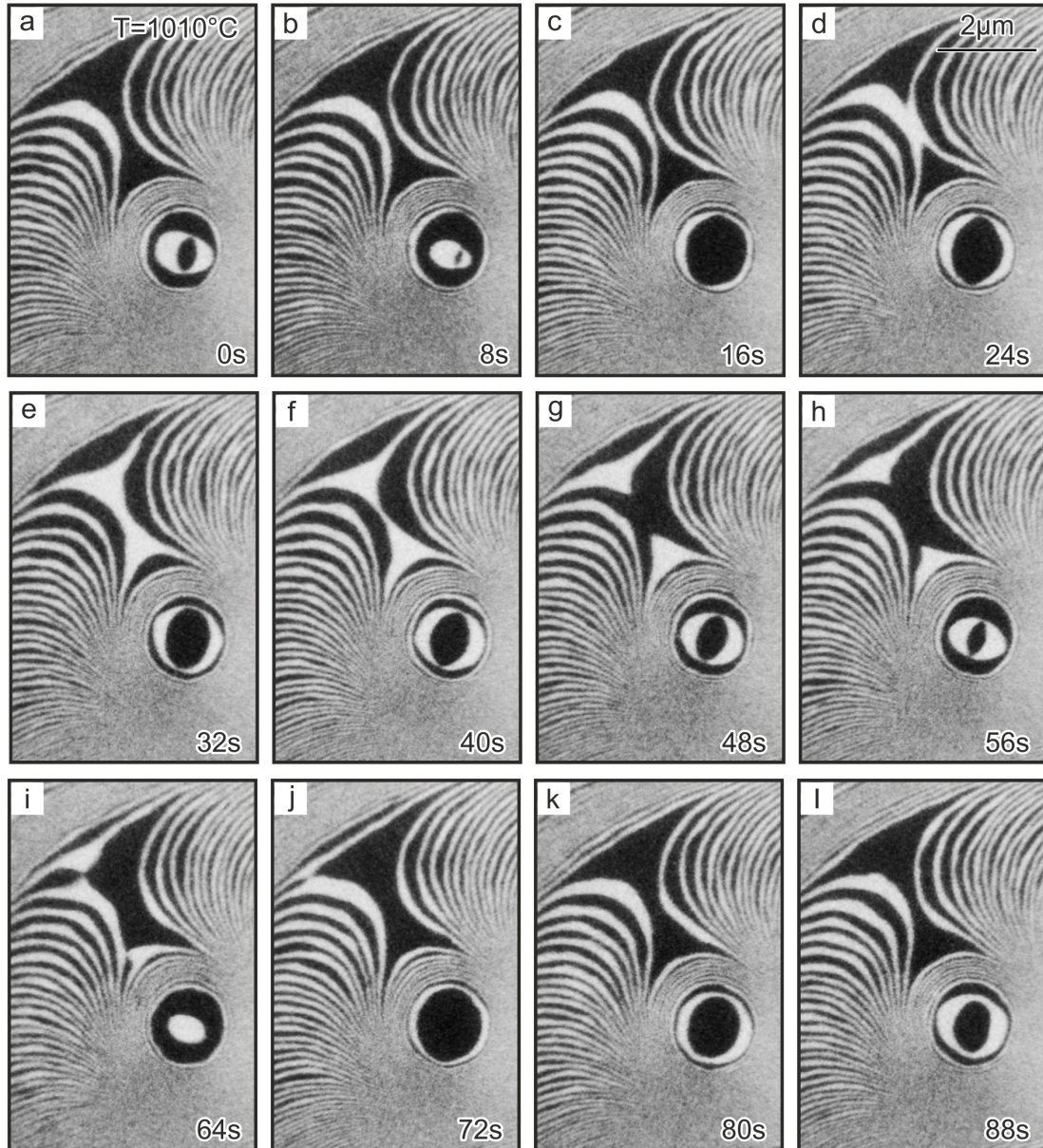


Abbildung 3.3: Zeitliche Bildabfolge des Zerfalls eines Hügels und eines Sattels auf Si(001). Die Temperatur der Oberfläche beträgt in diesem Experiment 1010°C und die Breite eines Bildes entspricht $5\mu\text{m}$. Die Zeitdifferenz zwischen zwei aufeinanderfolgenden Bildern liegt bei 8 s. Im Laufe der Bilderserie schrumpft der Hügel um vier Lagen, der Sattel allerdings nur um zwei Lagen. Zudem zerfallen weiße Terrassen schneller als schwarze.

3.3.2 Temperaturabhängigkeit des Zerfalls

Experimente, wie in Abbildung 3.3 gezeigt, sind insgesamt für sieben verschiedene Temperaturen im Bereich von 900°C bis 1140°C durchgeführt worden. Anschließend ist jeweils getrennt für den Hügel und für den Sattel die Zerfallsrate in Lagen pro Sekunde bestimmt worden. Diese Raten können in einem Arrhenius-Plot, also über der inversen Temperatur, aufgetragen werden. Abbildung 3.4 zeigt die daraus resultierende Darstellungsform der Messergebnisse. Wie im Inset gezeigt, entsprechen die roten Datenpunkte den Zerfallsraten oben auf dem Hügel, während die grünen Datenpunkte die Zerfallsraten am Sattelpunkt wiedergeben. Der im Inset gezeigte Hügel steht dabei lediglich repräsentativ für mehrere unterschiedliche Hügel, die zum Teil sogar auf unterschiedlichen Proben gemessen wurden.

In allen Fällen ist zu erkennen, dass beide Zerfallsraten stark von der Temperatur abhängen und keinesfalls konstant sind. Dabei ist für Temperaturen bis etwa 1060°C die Zerfallsrate des Hügels immer größer als die Zerfallsrate des Sattels. Für höhere Temperaturen bis etwa 1140°C sind diese beiden Raten dann ungefähr gleich. Die Zerfallsrate für den Sattel ist jedoch zu keiner Zeit größer, als die für den Hügel. Abbildung 3.4 endet bei einer Temperatur von etwa 1140°C, weil es aufgrund des in Abschnitt 1.2.2 erläuterten Aufrauungsphasenübergangs für noch höhere Temperaturen nicht möglich ist, den Lage-für-Lage-Zerfall im LEEM direkt zu beobachten. Um trotz des daraus resultierenden Kontrastverlustes dennoch Daten für diesen Hochtemperaturbereich zu gewinnen, wurde wie folgt vorgegangen: Bei niedriger Temperatur (unter 900°C) wurden Hügel ausgewählt, bei denen die einzelnen Stufen zwischen Sattel und Gipfel des Hügels so weit auseinander lagen, dass die Terrassen dazwischen im LEEM noch aufzulösen waren und nicht wie diskutiert lediglich grau erscheinen. Der Inset in Abbildung 3.4 zeigt beispielhaft einen solchen Hügel. Anschließend wurde die Anzahl der Stufen eines solchen Hügels gezählt, also im wesentlichen die Höhe bestimmt. Die ausgewählten Hügel sind daher relativ niedrig und es ergaben sich zumeist Höhen zwischen 10 und 20 atomaren Lagen. Nach dem Wissen um die Höhe ist die Probe schlagartig und für kurze Zeit auf Temperaturen zwischen 1200°C und 1300°C erhitzt und so schnell wie möglich wieder abgekühlt worden, was im Prinzip der angesprochenen “Flash-Annealing” Prozedur entspricht. Abschließend wurden wieder die Stufen zwischen Sattelpunkt und Hügel gezählt. Das Ergebnis

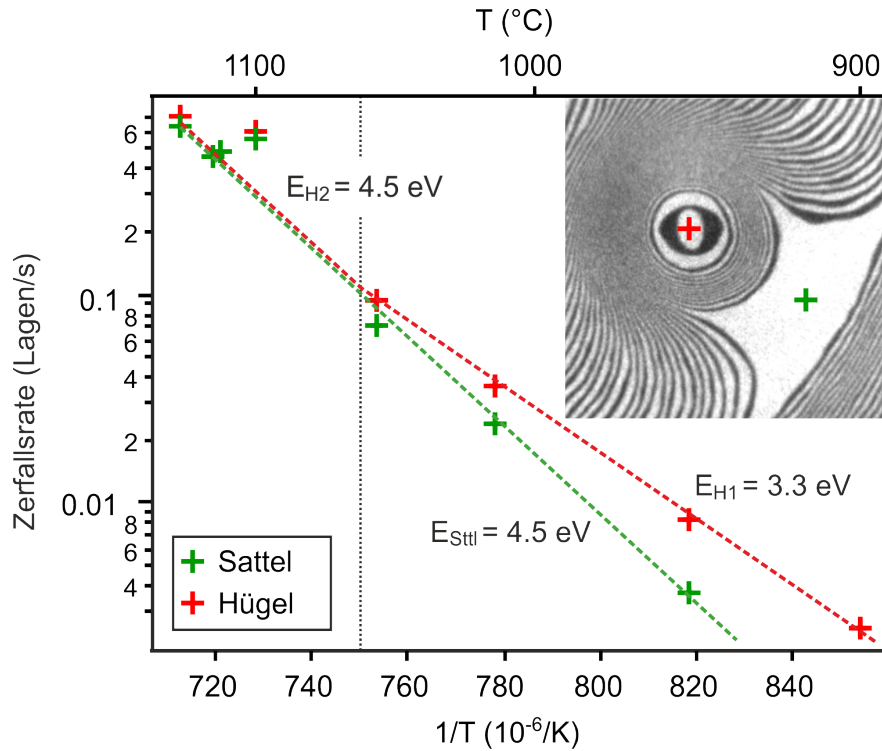


Abbildung 3.4: Zerfallsrate für den Hügel (rote Kreuze) und für den Sattel (grüne Kreuze) als Funktion der inversen Temperatur. Die Datenpunkte stammen aus mehreren Experimenten, die zum Teil auf mehreren verschiedenen Proben durchgeführt wurden. Unterhalb von 1060°C unterscheiden sich die Zerfallsraten deutlich, wohingegen sie oberhalb dieser Temperatur nahezu identisch sind. Aus den linearen Interpolationen sind folgende Aktivierungsenergien bestimmt worden: $E_{Sttl} = 4,5 \text{ eV}$, $E_{H1} = 3,3 \text{ eV}$ und $E_{H2} = 4,5 \text{ eV}$

zeigt, dass die Anzahl der Stufen weder sinkt, noch steigt, was bedeutet, dass auch in diesem Hochtemperaturbereich die Zerfallsraten von Hügel und Sattel gleich sind.

Auf diese Weise ist es zwar möglich, das Verhältnis der beiden Zerfallsraten zu bestimmen, nicht jedoch die absoluten Zerfallsraten für Hügel und Sattelpunkt einzeln. Abbildung 3.4 kann also nicht so einfach auf diesen Temperaturbereich erweitert werden. Stattdessen erscheint es sinnvoll, hierzu das Verhältnis der Zerfallsraten, also beispielsweise die Zerfallsrate des Sattels geteilt durch die Zerfallsrate des Hügels, extra aufzutragen. Eine solche Auftragung ist in Abbildung 3.5 gezeigt. Die roten Messpunkte konnten direkt aus den Experimenten, denen auch Abbildung 3.4 zugrunde liegt, berechnet werden. Die drei grünen Messwerte zeigen exemplarisch den Hochtemperaturbereich zwischen etwa 1170°C und 1300°C, in dem im LEEM-Bild eine direkte Beobachtung aufgrund des Kontrast-

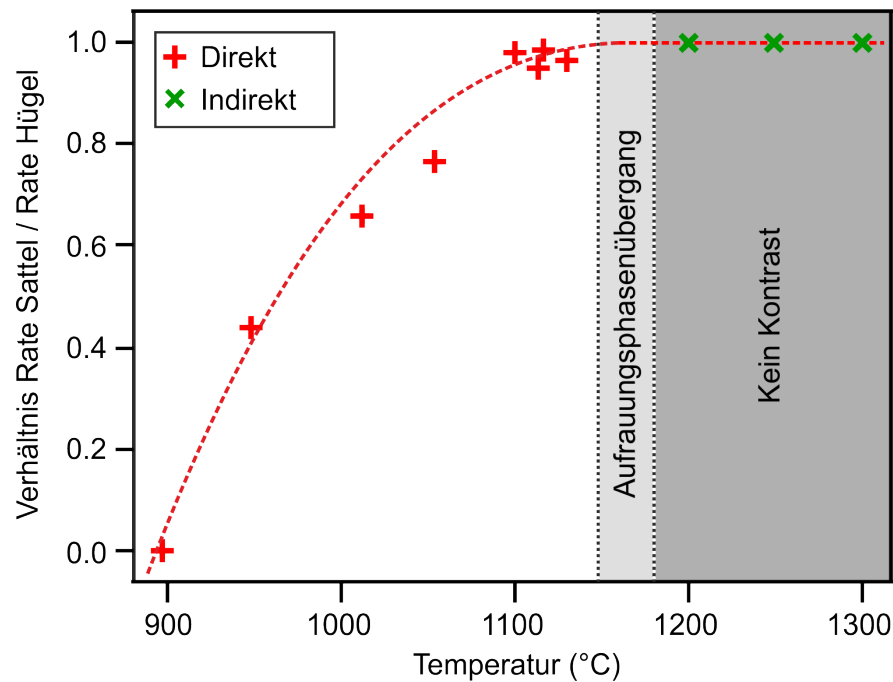


Abbildung 3.5: Verhältnis der beiden Zerfallsraten (Rate Sattel geteilt durch Rate Hügel) als Funktion der Temperatur. Zwischen etwa 1170°C und 1200°C ist der Aufrauungsphasenübergang beobachtet worden. LEEM Bilder bei höheren Temperaturen liefern entsprechend keinen Kontrast mehr. Die roten Messwerte konnten daher direkt, d.h. durch Zusehen beim Zerfall bestimmt werden; die grünen Messwerte hingegen nur durch einen Vergleich der Hügelhöhe vor und nach dem Erhitzen auf die jeweilige Temperatur. Die rote gestrichelte Kurve dient lediglich der Veranschaulichung des Verlaufs.

verlustes nicht möglich ist. In diesem Bereich ist das Verhältnis von Eins auf die eben beschriebene Weise bestimmt worden. Die Grenze zwischen den beiden verschiedenen Bereichen ist in der Abbildung 3.5 als Aufrauungsphasenübergang gekennzeichnet und grafisch entsprechend verdeutlicht. Die rot-gestrichelte Linie dient lediglich als “Guide to the eye”, um den Trend dieses Ratenverhältnisses wiederzugeben und basiert auf keinem mathematischen Fit.

Zusammenfassend kann auf Grundlage der beiden unterschiedlichen Experimente gesagt werden, dass die Höhe eines Hügels, der von der Kontamination befreit wurde, niemals zunimmt, auch nicht bei extrem hohen Temperaturen kurz unterhalb des Schmelzpunktes.

3.3.3 Vollständiger Zerfall

Für niedrige Temperaturen unterhalb von etwa 900°C zeigen die beiden Abbildungen, dass am Sattelpunkt kein Zerfall mehr stattfindet, während der Hügel jedoch weiter zerfällt. Eine Erklärung liefert der zweidimensionale Gibbs-Thomson-Effekt (Abschnitt 1.2.4), wonach das Ablösen von Atomen an Stufen mit größerer Krümmung, also kleinerem Radius, bevorzugt abläuft. Im anderen Extremfall von sehr hohen Temperaturen oberhalb von etwa 1060°C sind auch am Sattel bereits so starke Stufenfluktuationen zu beobachten, dass die lokale Stufenkrümmung gerade durch diese Fluktuationen dominiert wird. Der Gibbs-Thomson-Effekt wirkt ab dieser Temperatur entsprechend auf beide Bereiche ähnlich stark, worauf im folgenden Abschnitt 3.3.4 noch detaillierter eingegangen wird.

Im Temperaturbereich zwischen etwa 900°C und 950°C ist es deshalb möglich, einen Hügel mit der in den Experimenten typischen Größe innerhalb von wenigen Stunden vollständig zerfallen zu lassen. Dieser Zerfallsprozess kann im LEEM über die gesamte Zeit beobachtet werden. Die Abbildung 3.6 zeigt eine zeitliche Abfolge von so entstandenen Bildern bei einer Temperatur von 920°C bis der Hügel komplett zerfallen ist und noch darüber hinaus. Mit Ausnahme einer leichten thermischen Drift, die in der Bilderserie allerdings bereits weitgehend korrigiert wurde, ist die Stabilität des Mikroskops sogar bei so hohen Temperaturen und über einen so langen Zeitraum gegeben. Der hier gezeigte Hügel hatte anfangs eine Höhe von etwa 50 Lagen und schrumpfte zunächst bei dieser Temperatur wie beschrieben Lage für Lage, ohne dass sich die Höhe des Sattels veränderte. Abbildung 3.6 (a) zeigt den bereits auf 26 Lagen geschrumpften Hügel, wobei die angegebene Zeit an dieser Stelle willkürlich auf Null gesetzt wird. Etwa 110 Minuten später ist der Hügel auf nur noch eine atomare Lage geschrumpft (d) und weitere 10 Minuten später vollständig zerfallen (e).

Ab diesem Zeitpunkt können sich auch die darunter liegenden Stufen wieder frei bewegen, da das “Pinning”-Zentrum in Form des Hügels jetzt nicht mehr vorhanden ist. Die zurück gebliebenen, lokal stark gekrümmten Stufen beginnen in Folge dessen sich langsam wieder zu glätten (Abbildung 3.6 (f)). Dies liegt zum einen wieder am diskutierten Gibbs-Thomson-Effekt und zum anderen am chemischen Potential der Stufen. Letzteres ist entsprechend Gleichung 1.6 proportional zur Krümmung der Stufe sowie zur Stufensteifigkeit und verringert sich folglich bei Begradigung der Stufe. Daher “wachsen” sich schließlich auch noch die ver-

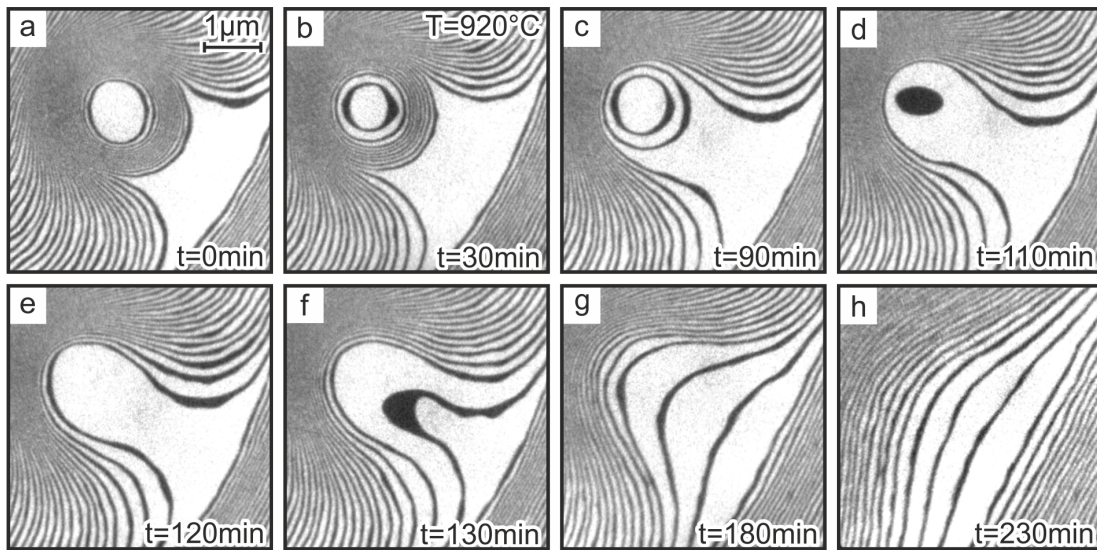


Abbildung 3.6: Zeitliche Bildabfolge des vollständigen Zerfalls eines Hügels. Die Oberflächentemperatur beträgt 920°C und die Zeitdifferenz zwischen dem ersten und dem letzten Bild 230 Minuten. Bei dieser Temperatur zerfällt aufgrund des Gibbs-Thomson-Effekts nur der Hül, nicht aber der Sattel ((a) - (e)). Nach dem vollständigen Zerfall und dem damit einhergehenden Verlust des "Pinning"-Zentrums ziehen sich aus energetischen Gründen die Stufen wieder gerade ((f) - (h)).

bleibenden Ausbuchtungen in (g) mit der Zeit langsam heraus und die gesamte Oberfläche glättet sich noch weiter, wie in (h) zu sehen ist.

3.3.4 Diffusion vs. Desorption

Insgesamt wird das, was bis hierher immer allgemein als Zerfall von Hügeln und Sätteln beschrieben wurde, von zwei verschiedenen Mechanismen bestimmt: Auf der einen Seite gibt es die Diffusion und auf der anderen Seite die Desorption. Bei der Diffusion geht der Zerfall der obersten Terrasse dadurch von statten, dass sich Silizium-Atome von der Stufe lösen und über die darunterliegende Terrasse bis zur nächsten Stufe und über deren Schwoebel-Ehrlich-Barriere (Abschnitt 1.2.1.7) hinweg diffundieren. Die Terrassen zerfallen also durch die Verteilung des Materials auf der Oberfläche. Bei der Desorption hingegen lösen sich zunächst die Atome ebenfalls von der obersten Stufe und diffundieren über die darunterliegende Terrasse, desorbieren dann allerdings von dort aus, da die Bindungsenergie zur Terrasse kleiner ist, als zur Stufe. Der experimentell beobachtete und hier beschriebene Zerfall ist nun eine Mischung aus diesen beiden Mechanismen. Zudem

ist davon auszugehen, dass sich das Verhältnis der beiden Prozesse mit der Temperatur ändert. Bei niedrigen Temperaturen (um 900°C) ist zu erwarten, dass für den Zerfall hauptsächlich die Diffusion eine Rolle spielt, wohingegen bei hohen Temperaturen (bis zu 1300°C) die Desorption überwiegen wird.

Diese Aufteilung der beiden Mechanismen in zwei verschiedene Temperaturbereiche passt auch zu den in Abbildung 3.4 gezeigten Ergebnissen. Für Temperaturen oberhalb von etwa 1060°C sind die Zerfallsraten von Hügel und Sattel nahezu identisch und man befindet sich im Desorptionsbereich. Der Gibbs-Thomson-Effekt bevorzugt bei diesen Temperaturen den Hügelzerfall nun nicht mehr, da die lokale Stufenkrümmung plötzlich auf der gesamten Oberfläche im Wesentlichen nur noch durch die Stufenfluktuationen dominiert wird und somit vergleichbar groß ist. Auch eine erniedrigte Schwoebel-Ehrlich-Barriere spielt bei diesen Temperaturen nur noch eine vernachlässigbare Rolle, weil die von einer Stufe gelösten Silizium Atome in der Regel noch vor Erreichen der nächsten Stufe desorbieren werden. Bei etwa 1060°C ist in Abbildung 3.4 dann gut ein Abknicken der Zerfallsrate des Hügels zu erkennen (rote gestrichelte Linie). Unterhalb dieser Temperatur dominiert der Zerfall durch Diffusion und eine Desorption ist vernachlässigbar. Aufgrund dessen werden auch zwei verschiedene Aktivierungsenergien angenommen, die sich jeweils aus der Steigung der Geradenanpassungen in diesem Arrhenius-Plot ergeben. Für den Sattel konnte eine Aktivierungsenergie von $E_{Sttl} = 4,5 \text{ eV}$ über den gesamten Temperaturbereich bestimmt werden. Für den Zerfall des Hügels ergeben sich zwei unterschiedliche Steigungen. Im Temperaturbereich über 1060°C folgt entsprechend mit $E_{H2} = 4,5 \text{ eV}$ die gleiche Aktivierungsenergie wie für den Sattel und für Temperaturen unter 1060°C eine mit $E_{H1} = 3,3 \text{ eV}$ etwas kleinere Aktivierungsenergie.

Ebenfalls passt diese Erklärung sehr gut zu der Arbeit von Pang et al. [44], in der der Zerfall von Si-Hügeln auf Si(111) untersucht und theoretisch beschrieben wurde. Auch in den dortigen Rechnungen konnte gezeigt werden, dass als Ansatz eine Summe aus zwei Zerfallsratengleichungen, eine für die Diffusion und eine für die Desorption (detailliertere Informationen hierzu auch in [91]), am besten zu den experimentellen Daten dieser Veröffentlichung passt. Abbildung 3.7 zeigt einen zentralen Befund dieser Publikation in abgewandelter Form. Aufgetragen ist der Logarithmus der Zerfallszeit einer Si-Insel mit einer Ausgangsfläche von $3,46 \text{ } \mu\text{m}^2$ als Funktion der inversen Temperatur. Die drei schwarzen Kurven zeigen die drei fundamentalen theoretischen Ansätze aus [44]. Die fein gestrichelte

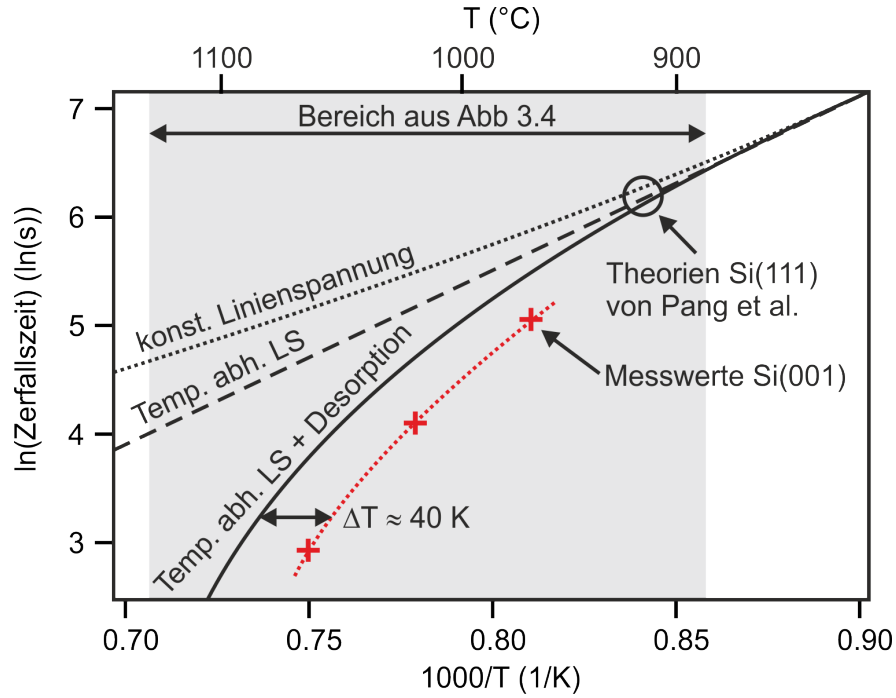


Abbildung 3.7: Logarithmus der Zerfallszeit einer Si-Insel mit einer Ausgangsfläche von $3,46 \mu\text{m}^2$ als Funktion der inversen Temperatur. Die schwarzen Kurven zeigen drei theoretische Verläufe für Si(111) aus [44], die auf unterschiedlichen Ansätzen basieren: Annahme konstanter Linienspannung ohne Berücksichtigung von Desorption (fein gestrichelt), Annahme temperaturabhängiger Linienspannung ohne Berücksichtigung von Desorption (grob gestrichelt) und unter zusätzlicher Berücksichtigung der Desorption (durchgezogen). In rot sind auf die Ausgangsfläche normierte experimentelle Daten der vorliegenden Arbeit für den Zerfall eines Hügels auf Si(001) eingetragen. Trotz der unterschiedlichen Oberflächen beträgt die Diskrepanz auf der Temperaturachse nur etwa 40 K. Abbildung in Anlehnung an [44].

Linie beschreibt den Verlauf unter der Annahme einer konstanten Linienspannung und ohne Berücksichtigung von Desorption. Grob gestrichelt ist der Verlauf unter Berücksichtigung einer temperaturabhängigen Linienspannung eingezeichnet. Die durchgezogene schwarze Linie zeigt schließlich den theoretischen Verlauf unter der zusätzlichen Berücksichtigung der Desorption. Alle in der Veröffentlichung gezeigten experimentellen Werte lagen dabei relativ genau auf dieser letzten, durchgezogenen Linie.

Grau hinterlegt ist der Temperaturbereich aus Abbildung 3.4, in dem die für die vorliegende Arbeit relevanten Messdaten für den Zerfall eines Hügels liegen. Normiert auf die gleiche Ausgangsfläche wie in [44] ist es nun möglich, in den Graphen ebenfalls drei Messwerte der Zerfallszeit für Si-Hügel auf Si(001) aus der vorlie-

genden Arbeit einzutragen (rote Kreuze). Es ist deutlich zu erkennen, dass die Werte im Vergleich zur durchgezogenen schwarzen Theoriekurve einen qualitativ sehr ähnlichen Verlauf aufweisen. Obwohl es sich bei diesen experimentellen Werten um Messpunkte für Si(001) handelt und die Theorie für Si(111) gerechnet ist, kann durch diesen Grad der Kongruenz gut der diskutierte Ansatz einer Summe aus Diffusion und Desorption verifiziert werden. Die Diskrepanz beträgt auf der Temperaturachse nur etwa 40 K und könnte leicht auf die in Abschnitt 2.4 diskutierten Fehler in der Temperaturbestimmung oder auch auf die unterschiedlichen Linienspannungen der beiden verschiedenen Oberflächen zurück geführt werden.

3.4 Asymmetrischer Zerfall eines Hügels

In diesem Abschnitt wird sich nun gesondert auf den Zerfall der jeweils obersten Terrasse auf einem Hügel konzentriert. Bei nochmaliger Betrachtung der Abbildung 3.3 fällt nämlich noch ein weiterer, wichtiger Aspekt auf: Bei den acht gezeigten Bildern ist nur auf einem Bild (b) eine weiße Terrasse die oberste auf dem Hügel. Bei den anderen sieben Bildern handelt es sich bei der obersten Terrasse jeweils um eine schwarze. Dieses Phänomen soll im Folgenden an einem anderen Hügel detaillierter untersucht werden.

3.4.1 Zeitkonstanten des Zerfalls

Die obere Bildabfolge in Abbildung 3.8 zeigt LEEM-Bilder der zeitlichen Entwicklung eines Hügels bei 920°C. Im Wesentlichen zerfällt der Hügel wie bisher beschrieben und diskutiert. Die gezeigten Bilder wurden so gewählt, dass sich von Bild zu Bild jeweils nur eine atomare Lage aufgelöst hat. Vielmehr zeigen die Bilder darüber hinaus gerade immer genau die letzte Aufnahme der obersten Terrasse, bevor diese komplett zerfallen ist. Beim nächsten aufgenommenen Bild wäre die darunter liegende Terrasse bereits flächenmäßig geschrumpft, weshalb es sinnvoll erscheint, hier immer das vorangegangene Bild als Startpunkt für den Zerfall der nächsten Terrasse zu wählen. Die zeitliche Differenz zwischen zwei gezeigten, aufeinander folgenden Bildern ist jeweils auf den Pfeilen in den Bild-

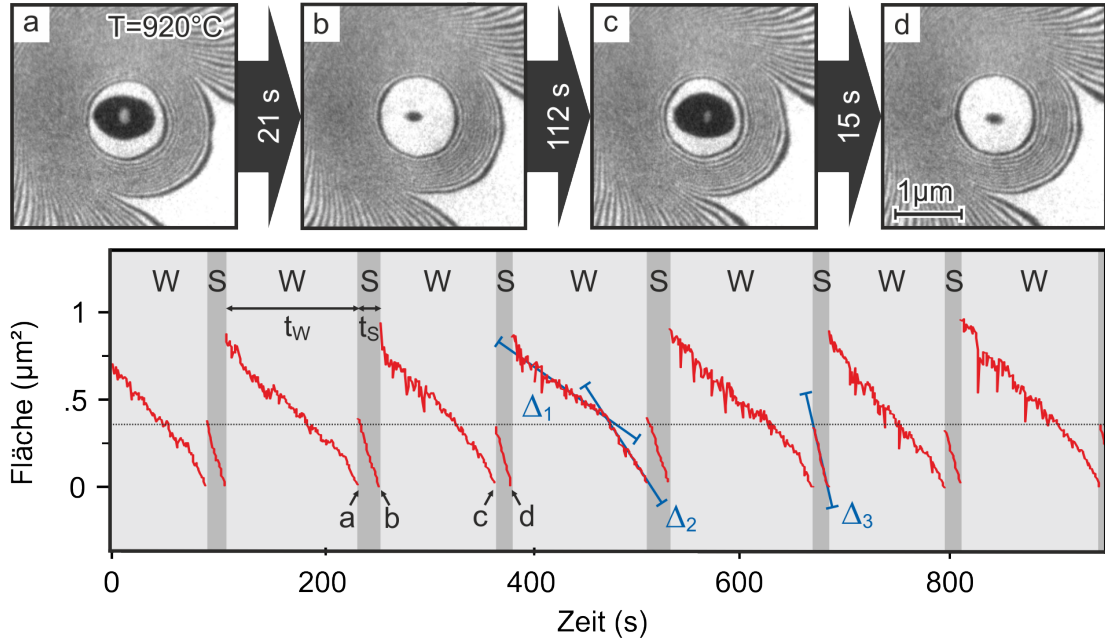


Abbildung 3.8: Obere Bildsequenz: LEEM Bilder der zeitlichen Entwicklung des Zerfalls eines Hügels bei 920°C . Zwischen aufeinander folgenden Bildern schrumpft der Hügel jeweils nur um eine atomare Lage. Die dafür benötigte Zeit ist in Pfeilen zwischen den Bildern eingetragen. Unteres Diagramm: Fläche der jeweils obersten Terrasse als Funktion der Zeit. Die Zeitkonstanten für den Zerfall einer weißen (W) und schwarzen (S) Terrasse sind durch die beiden verschiedenen Grautöne verdeutlicht und unterscheiden sich um mehr als den Faktor Fünf. Zudem ergeben sich durch die drei unterschiedlichen Steigungen folgende Zerfallsraten: $\Delta_1 = 3900 \text{ nm}^2/\text{s}$, $\Delta_2 = 9500 \text{ nm}^2/\text{s}$ und $\Delta_3 = 25000 \text{ nm}^2/\text{s}$.

zwischenräumen eingetragen. Zwischen Bild (a) und Bild (b) liegt eine Zeit von 21 s, in der die oberste schwarze Terrasse zerfallen ist. Die darunter liegende weiße Terrasse benötigt für den vollständigen Zerfall hingegen 112 s ((b) - (c)), während der Zerfall der anschließenden schwarzen Terrasse zwischen Bild (c) und (d) nur 15 s dauert und damit wieder in der gleichen Größenordnung wie für die erste Terrasse liegt. Auch für die folgenden Terrassen des Hügels ergeben sich ähnliche Werte für die Zeitkonstante des Zerfalls. Zusammenfassend kann daher gesagt werden, dass für jede zweite Terrasse eines solchen Hügels eine andere Zerfallsrate beobachtet wird. In dem explizit gezeigten Fall des Hügels aus Abbildung 3.8 und unter den verwendeten Abbildungsbedingungen zerfallen schwarze Terrassen deutlich schneller als weiße Terrassen.

Um dieses Phänomen quantitativ besser untersuchen zu können, ist im unterem Diagramm in Abbildung 3.8 die Fläche der jeweils obersten Terrasse des Hügels als Funktion der Zeit aufgetragen. In den mit “W” markierten hellen Bereichen

der Abbildung wird die oberste Lage durch eine weiße und in den mit “S” markierten grauen Bereichen durch eine schwarze Terrasse gebildet. Während des Zerfalls schrumpft nun die Fläche der obersten Terrasse kontinuierlich bis zu ihrem vollständigen Verschwinden. Erst ab diesem Punkt wird die Fläche der nächsten Terrasse gemessen, wodurch die Kurve schlagartig ansteigt. Genau an diesen Punkten liegen auch die vier oben gezeigten Bilder (a) - (d), deren genaue Aufnahmezeitpunkte im unteren Graphen ebenfalls durch “a” bis “d” gekennzeichnet sind. Die diskutierten, typischen Zerfallszeiten für die zwei unterschiedlichen Terrassentypen sind dort mit t_W und t_S eingetragen. Es ist nochmals deutlich zu erkennen, dass die Zeit t_W , die eine weiße Terrasse für den Zerfall benötigt, viel größer ist als die Zeit t_S , in der eine schwarze Terrasse zerfällt. In dem hier gezeigten Experiment findet sich ein mittleres Verhältnis t_W/t_B , welches größer ist als fünf.

3.4.2 Zerfallsraten

Insgesamt sind zwei Effekte für diese so unterschiedlichen Zerfallszeiten verantwortlich. Zum einen fällt genauer betrachtet auf, dass eine schwarze Terrasse sogar schon mit dem Zerfall beginnt während die darüber liegende weiße noch vorhanden ist. Eine weiße Terrasse hingegen beginnt erst zu zerfallen, wenn die darüber liegende schwarze vollständig verschwunden ist. Daher beginnen im unteren Graphen der Abbildung 3.8 die schwarzen Terrassen ihren gezeigten Zerfall immer mit einer deutlich kleineren Ausgangsfläche als die weißen Terrassen. Dieser Effekt reicht jedoch nicht aus, um den Unterschied in der Zerfallszeit für die beiden Terrassentypen zu begründen. So fällt darüber hinaus auf, dass auch die Geschwindigkeiten unterschiedlich sind, mit denen ein Terrassentyp zerfällt. Ein Vergleich dieser Geschwindigkeiten ist jedoch nur für die selbe Terrassengröße sinnvoll, also immer erst ab der Größe, ab der auch eine schwarze Terrasse oben auf dem Hügel zu finden ist. Gerade diese Grenze ist im unteren Teil der Abbildung 3.8 durch die horizontal gestrichelte Linie gekennzeichnet. In dem Diagramm sind daher in blau auch insgesamt drei Zerfallsraten eingezeichnet. Die Rate Δ_1 beschreibt dabei den anfänglichen Zerfall der weißen Terrasse bis gerade zu der Fläche, mit der im Folgenden auch die schwarzen Terrassen ihren Zerfall oben auf dem Hügel beginnen (gestrichelte Linie). In dem gezeigten Expe-

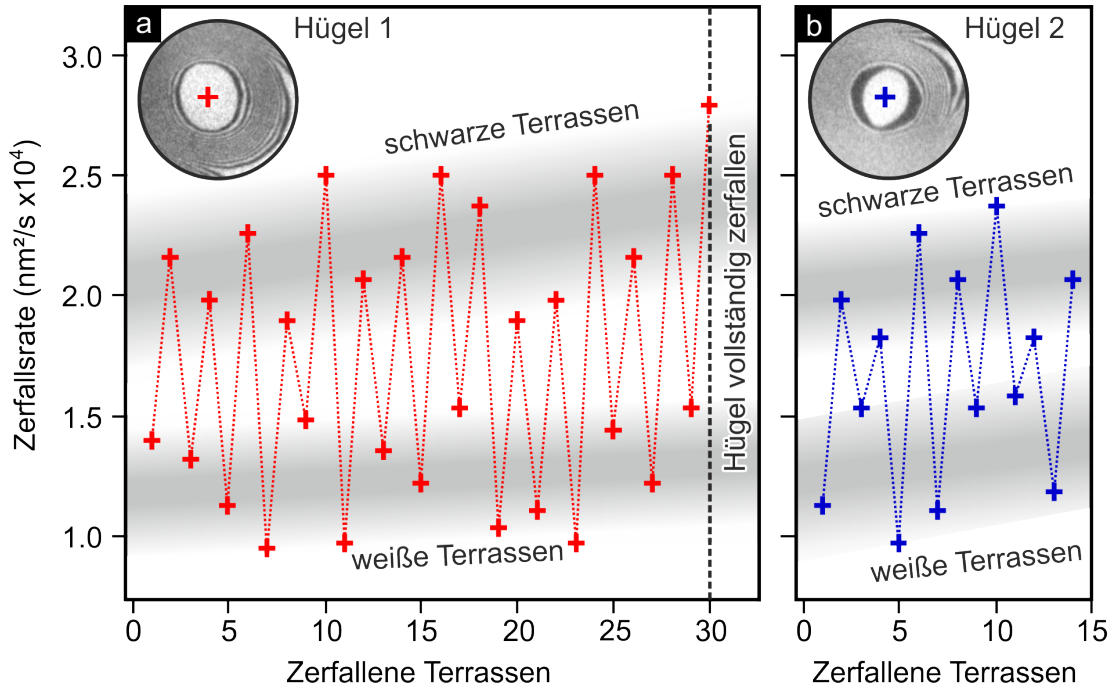


Abbildung 3.9: Zerfallsraten (Δ_2 und Δ_3) der beiden unterschiedlichen Terrassentypen als Funktion der zerfallenen Terrassen für zwei Hügel auf derselben Probe und bei der gleichen Temperatur von etwa 920°C . (a) Zerfallsraten der weißen (unterer grauer Bereich) und schwarzen Terrassen (oberer grauer Bereich) des in Abbildung 3.6 gezeigten Hügels bis zu dessen vollständigem Zerfall. Die Zerfallsraten der weißen Terrassen sind dabei immer deutlich geringer als die Raten der schwarzen Terrassen. Trotz großer Streuung macht es den Anschein, als wenn die Zerfallsraten mit abnehmender Hügelhöhe langsam zunehmen. (b) Zerfallsraten eines anderen Hügels auf derselben Probe. Auch hier liegen die Datenpunkte im gleichen Wertebereich und die schwarzen Terrassen zerfallen immer etwa doppelt so schnell wie die weißen Terrassen.

riment ist hierfür exemplarisch eine Zerfallsrate von $\Delta_1 = 3900 \text{ nm}^2/\text{s}$ bestimmt worden. Unterhalb dieser Fläche können die Raten schließlich sinnvoll verglichen werden und in dem gezeigten Experiment sind exemplarische Zerfallsraten von $\Delta_2 = 9500 \text{ nm}^2/\text{s}$ (weiße Terrasse) und $\Delta_3 = 25000 \text{ nm}^2/\text{s}$ (schwarze Terrasse) gemessen worden. Auf diese Weise kann gezeigt werden, dass die schwarzen Terrassen wirklich deutlich schneller zerfallen, also eine höhere Zerfallsrate besitzen, als die weißen Terrassen.

Da die genannten Zahlenwerte für Δ_2 und Δ_3 bisher lediglich beispielhaft für eine Einzelterrasse des jeweiligen Terrassentyps bestimmt worden sind, gilt es als nächstes die Allgemeingültigkeit unterschiedlicher Zerfallsraten zu verifizieren. Hierzu ist der in Abbildung 3.6 gezeigte Hügel bis zu dessen vollständigem Zerfall

genauer untersucht worden. Die für die beiden verschiedenen Terrassentypen bestimmte Zerfallsrate der letzten 30 Monolagen dieses Hügels ist in Abbildung 3.9 (a) als Funktion der zerfallenen Terrassen aufgetragen. Die oberen grau hinterlegten Datenpunkte entsprechen dabei den Zerfallsraten der schwarzen Terrassen und die unteren denen der weißen Terrassen. Obwohl die Werte teilweise um den Faktor Zwei streuen, ist dennoch klar ersichtlich, dass die Zerfallsrate der weißen Terrassen ausnahmslos geringer ist, als die Zerfallsrate der schwarzen Terrassen. Letztere ist während des gesamten Hügelzerfalls im Mittel etwa doppelt so hoch.

Weiterhin fällt bei dieser Auftragung auf, dass die beiden unterschiedlichen Zerfallsraten den Anschein machen mit sinkender Hügelhöhe langsam zuzunehmen. Dieser Trend ist ebenfalls durch die grau hinterlegten Bereiche deutlich erkennbar. Deren Steigung entspricht dabei gerade der Steigung eines linearen Fits der Messwerte des entsprechenden Terrassentyps. Angesichts der enormen Streuung der Werte relativ zur Steigung der beiden Bereiche kann es sich dabei allerdings auch nur um eine zufällige Signatur handeln.

Abbildung 3.8 zeigt leider nicht das genaue Verhalten einer schwarzen Terrasse, während diese bereits zerfällt, obwohl sie nicht die oberste auf einem Hügel ist. Für diesen Terrassentyp fehlt entsprechend ein Wert für die Zerfallsrate vergleichbar mit Δ_1 für die weißen Terrassen. Hierfür bietet es sich an, einen Querschnitt entlang der Verbindungslinie von Hügel und Sattel zu betrachten. Die genaue Lage eines solchen Schnittes ist in dem Inset in Abbildung 3.10 beispielhaft gezeigt. In richtiger Orientierung als Funktion der Zeit aufgetragen, ergeben sich ähnliche Daten wie in dem Graphen in Abbildung 3.8 unten. Abbildung 3.10 zeigt genau eine solche Auftragung des Zerfalls eines Hügels. Hier ist auf der Hochachse allerdings nicht die Fläche, sondern der mittlere Radius (der elliptischen Inseln) ausgehend vom Mittelpunkt des Hügels abgetragen. Es fällt auf, dass die Schnitte nach oben und unten streuen. Diese Verschiebung tritt zum einen sehr hochfrequent auf, was an den vielen dünnen Spitzen zu erkennen und auf die Fluktuation der Stufen zurückzuführen ist. Zum anderen ist, insbesondere im oberen Teil des Bildes, allerdings auch eine Verschiebung auf größerer Zeitskala zu erkennen. Diese ist in einem Gesamtdrift der Probe begründet, welche trotz aufwändiger Driftkorrektur nicht vollständig kompensiert werden konnte.

Die Asymmetrie des Zerfalls ist auch in dieser Abbildung sehr gut zu erkennen. Der Knick in den Zerfallsraten und damit die beiden unterschiedlichen Steigungen für denselben Terrassentyp ist zwar nicht so ausgeprägt wie in Abbildung 3.8, aber

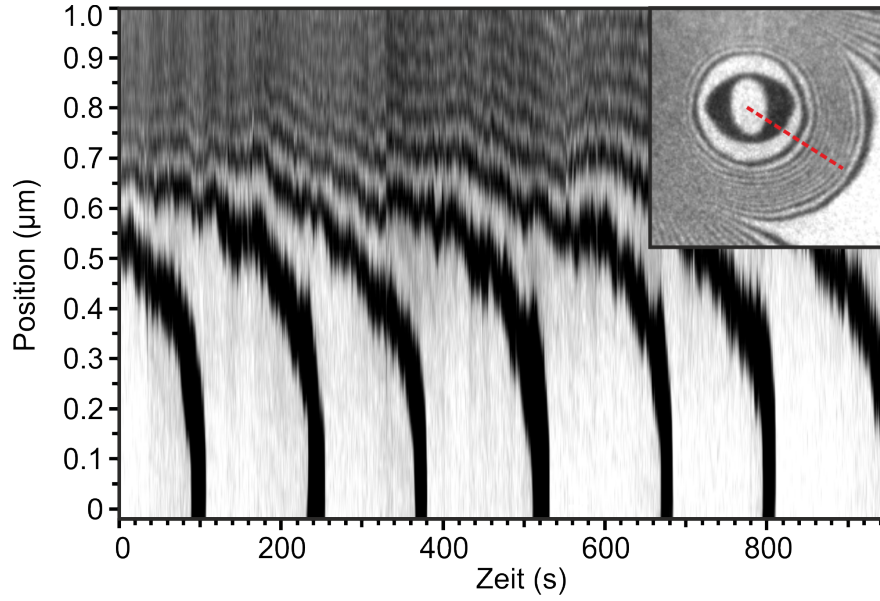


Abbildung 3.10: Schnitt durch eine LEEM-Bilderserie eines bei 920°C zerfallenden Hügels vom Mittelpunkt des Hügels ($y=0$) in Richtung des Sattelpunkts als Funktion der Zeit. Es handelt sich um den selben Hügel, der auch in Abbildung 3.8 ausgewertet wurde. Zusätzlich zu den diskutierten Merkmalen ist in dieser Abbildung auch das Verhalten der zweitobersten Terrasse zu erkennen. Diese schrumpft hier bereits um etwa 25% (weiß) bzw. sogar 65% (schwarz) noch bevor die jeweils darüber liegende vollständig zerfallen ist (Umgerechnet in Bezug auf deren Ausgangsfläche; hier ist jedoch der Radius aufgetragen). Inset: Genaue Lage des Querschnittes im LEEM Bild (gestrichelte Linie).

dennoch erkennbar. Grund dafür ist im Wesentlichen die Auftragung des Radius und eben nicht der Fläche ($\propto r^2$) als Funktion der Zeit. Deutlich zu erkennen ist in dieser Auftragung allerdings auch das Verhalten der Terrassen, die sich nicht ganz oben auf dem Hügel befinden. Als erstes fällt auf, dass die schwarzen Terrassen bis zu dem Punkt, an dem die darüber liegende weiße vollständig zerfallen ist, eine ähnliche Zerfallsrate wie Δ_1 aufweisen. Anfangs zerfallen also beide Terrassentypen etwa gleich schnell, auch wenn die schwarzen Terrassen in Relation früher mit dem Zerfall beginnen. Weiterhin macht diese Abbildung sichtbar, dass auch die weißen Terrassen, entgegen vorheriger Behauptung und wenn auch deutlich geringer als die schwarzen, bereits noch bei Anwesenheit der darüber liegenden Terrasse mit dem Zerfall beginnen. Eine genaue Auswertung der Abbildung zeigt, dass die weißen Terrassen als Zweitoberste im Mittel etwa 25% ihrer Ausgangsfläche verlieren, während die schwarzen Terrassen in dieser Position als Zweitoberste im Mittel um ganze 65% ihrer Ausgangsfläche schrumpfen.

Das Phänomen der unterschiedlichen Zerfallszeiten der obersten Terrasse konnte

für einen großen Temperaturbereich (850°C bis 1140°C) verifiziert werden. Obwohl sich in diesem Regime die Zerfallsrate des gesamten Hügels um drei Größenordnungen ändert, ist die Asymmetrie weiterhin präsent. Weiterführend stellt sich allerdings die Frage, ob vielleicht die Größe dieses Effekts, also das Verhältnis der beiden unterschiedlichen Zerfallsraten, von der Temperatur abhängig ist. Diesbezüglich wurde eine Reihe von Experimenten, die den gesamten oben genannten Hochtemperaturbereich abdecken, durchgeführt und hinsichtlich dieses Verhältnisses ausgewertet. Als Ergebnis kann festgehalten werden, dass im Rahmen des Fehlers keine signifikante Temperaturabhängigkeit dieses “Pairing”-Effekts beobachtet werden kann. Dieses Resultat ist nicht weiter verwunderlich und passt ebenfalls zur in den nächsten Abschnitten diskutierten Erklärung des Effekts. Auf eine explizite Abbildung der Messergebnisse in Form der konstanten Ratenverhältnisse als Funktion der Temperatur wird daher an dieser Stelle bewusst verzichtet.

3.4.3 Kinetische Instabilität

Die gezeigten Beobachtungen der zwei verschiedenen Zerfallsraten Δ_2 und Δ_3 sowie des unterschiedlichen Zerfallsbeginns der beiden Terrassentypen ist erstaunlich. Die (2×1)-Domäne der einen Terrasse kann durch eine einfache Rotation um 90° in die (1×2)-Domäne der anderen Terrasse überführt werden; beide Terrassentypen sind also prinzipiell äquivalent. Insbesondere für die geschlossenen Terrassen oben auf einem runden Hügel, sollte man daher naiv von einer Zerfallsrate ausgehen können, die unabhängig von der Ausrichtung der Terrasse ist. Die Tatsache, dass dem nicht so ist, ist teilweise bereits von Tanaka et al. [92] beobachtet und beschrieben worden. In der genannten Veröffentlichung wurde der Zerfall einer “biperiodic grating” Struktur, also einer Oberfläche, die wie ein Eierkarton geformt ist, untersucht. Die Temperatur lag dabei konstant bei 950°C und die theoretische Beschreibung basiert auf der Annahme, dass eine Desorption bei dieser Temperatur vernachlässigbar sei. Die beobachtete Asymmetrie wurde als “Pairing” bezeichnet und durch eine kleine kinetische Instabilität erklärt. Die von Tanaka et al. vorgestellte Theorie sagt ebenfalls die anhand von Abbildungen 3.8 und 3.10 diskutierte Beobachtung voraus, dass die schneller zerfallende Terrasse, im Vergleich zum anderen Terrassentyp, schon deutlich früher mit dem Zerfall

beginnt und, während die darüber liegende Terrasse noch vorhanden ist, bereits merklich an Fläche verliert.

In dieser Arbeit kann gezeigt werden, dass beide Signaturen des beschriebenen Pairing-Effektes auch noch bei Temperaturen von bis zu 1140°C vorhanden sind. Bei diesen Temperaturen kann nicht mehr davon ausgegangen werden, dass eine Desorption vernachlässigbar ist; Vielmehr ist die Desorption entsprechend Abschnitt 3.3.4 hier der vorherrschende Mechanismus des Zerfalls von Inseln. Daher ist es möglich Tanakas Befunde für den gesamten Temperaturbereich von etwa 850°C bis 1140°C auszuweiten. Zusätzlich kann gezeigt werden, dass der Pairing-Effekt auch bei vollständig isolierten Hügeln zu beobachten ist und nicht nur bei kompakten, biperiodischen Strukturen.

3.4.4 Makroskopische Verspannung

Weiterhin kann eine der hier gemachten Beobachtungen erst überhaupt nicht durch den Ansatz einer kinetischen Instabilität erklärt werden. Die von Tanaka präsentierte theoretische Beschreibung impliziert die völlig zufällige Wahl des bevorzugten Terrassentyps. Bei allen auf der selben Probe durchgeführten Zerfallsexperimenten (Je nach Probe bis zu 17 Experimente) konnte allerdings beobachtet werden, dass immer derselbe Terrassentyp bevorzugt zerfällt. Nur beim Vergleich zwischen unterschiedlichen Proben konnte ein Wechsel des schneller zerfallenden Terrassentyps festgestellt werden. Exemplarisch sind in Abbildung 3.9 neben dem bereits diskutierten Hügel 1, der vollständig zerfällt (a), noch die Zerfallsraten der Terrassen eines weiteren Hügels (Hügel 2) auf der selben Probe und bei gleicher Temperatur eingetragen (b). Hier ist zum einen beispielhaft zu sehen, dass auch bei dem zweiten Hügel ebenfalls der schwarze Terrassentyp schneller zerfällt. Zum anderen kann beobachtet werden, dass auch die mittleren Zerfallsraten der beiden Terrassentypen sehr gut mit denen des ersten Hügels übereinstimmen.

Als Erklärung für die beobachtete Asymmetrie des Zerfalls kann daher auf eine makroskopische Verspannung der Probe geschlossen werden. Diese Verspannung bricht die Symmetrie der (2×1) - und (1×2) -Domänen, sodass sich die freie Energie F_S der S_A und S_B Stufen abhängig von der Verspannungsrichtung ändert und als Konsequenz der Zerfall einer der beiden Terrassentypen bevorzugt wird. Aus diesem Grund kann auch von einem anisotropen Hügelzerfall gesprochen werden.

Verspannungseffekte sind häufig der Grund für Änderungen der freien Energie einer Oberfläche bzw. der Stufenenergien. So sind beispielsweise auch die beiden unterschiedlichen Kinkenenergien für S_A und S_B Stufen sowie die daraus resultierende elliptische Form der obersten Hügelterrassen wie in Abschnitt 3.2.2 diskutiert durch den intrinsischen Verspannungstensor σ_{ij} der Oberfläche aufgrund der in Abschnitt 1.1.1 erläuterten Rekonstruktion und Dimerisierung begründet. Ebenfalls haben sich eine Reihe von Arbeiten bereits mit der Auswirkung von sowohl intrinsischen, als auch extrinsischen Verspannungen auf die Stufenform [93, 94], Inselform [95] oder auch die (Wachstums-) Morphologie [96, 97] auf Si(001) beschäftigt. Da Verspannungen und Oberflächenenergien ineinander übersprechen, ist hier eine strikte Trennung nicht immer möglich. So kann beispielsweise auch die in Abschnitt 1.1.2 angesprochene spontane Stufenbildung auf hoch orientierten Si(001)-Oberflächen sowohl durch Energieminimierung, als auch durch den Abbau der intrinsischen Verspannungen (σ_D und σ_Z) erklärt werden [98].

Als Gründe für die hier vorliegende makroskopische Verspannung können eine ungleichmäßige Befestigung der Probe mittels Schrauben oder eine thermische Verspannung durch den Probenhalter bei den hohen Temperaturen ausgemacht werden. Auch die Größe des Pairing-Effektes muss folglich von der Richtung der Verspannung abhängig sein. Für eine Verspannungsrichtung, die gerade parallel zu den Dimeren des einen Terrassentyps und damit senkrecht zu den Dimeren des anderen Terrassentyps liegt, ist von einer maximalen Asymmetrie des Hügelzerfalls auszugehen. Liegt die Verspannungsrichtung allerdings gerade im 45° Winkel zu den beiden Dimerrichtungen, so ist davon auszugehen, dass keiner der beiden Terrassentypen beim Zerfall bevorzugt wird.

Insgesamt werden wohl beide Erklärungen zum Effekt des “Pairings” beitragen: Sowohl eine kinetische Instabilität, als auch eine makroskopische Verspannung der Probe. Letztere wird diesen Effekt allerdings dominieren, wie die erläuterten Beobachtungen zeigen. Zu einem “Pairing” aufgrund der von Tanaka et al. beschriebenen kinetischen Instabilität wird es daher wohl nur kommen, wenn die makroskopische Verspannung der Probe genau unter 45° auf den Dimeren steht, oder aber insgesamt zu vernachlässigen ist, was aufgrund der extrem hohen Temperaturen in der Praxis eher selten der Fall sein dürfte.

3.5 Zusammenfassung und Ausblick

In diesem Kapitel wurde der lagenweise Zerfall isolierter Si-Hügel und Sattelpunkte in deren Umgebung auf der Si(001)-Oberfläche beobachtet und detailliert analysiert. Zunächst ist dabei der Zerfall eines solchen Hügels mit dem eines Sattelpunktes verglichen worden. Aufgrund des Gibbs-Thomson-Effekts ist die Zerfallsrate des Hügels im Temperaturbereich von 850°C bis etwa 1060°C immer höher als die für den Sattelpunkt. Das bedeutet, dass die Höhe des Hügels relativ zum Sattel in diesem Temperaturbereich stetig abnimmt. Für noch höhere Temperaturen bis etwa 1300°C wirkt der Gibbs-Thomson-Effekt aufgrund der extrem starken Stufenfluktuationen an alle Stellen vergleichbar stark, sodass Hügel und Sattel in Folge dessen gleich schnell zerfallen. Daher ist es für einen solchen Hügel unmöglich, bei diesen hohen Temperaturen zu wachsen. Zusammengefasst wird sich ein Hügel zu keiner Zeit spontan bilden oder in der Höhe wachsen. Alle sich auf einer Oberfläche befindlichen Hügel müssen folglich unterhalb einer Kontamination während der anfänglichen Probenpräparation durch die “Flash-Annealing” Prozedur entstanden sein. Nur zu diesem Zeitpunkt kann ein Hügel als “Pinning” Zentrum fungieren, ohne dass es ihm selbst möglich wäre zu zerfallen.

Weiterhin konnte gezeigt werden, dass die Zerfallsrate der obersten Lage eines Hügels nicht etwa konstant ist, sondern vielmehr jede zweite Lage schneller zerfällt. Dieser als “Pairing” bezeichnete Effekt beruht auf sehr empfindlichen Gleichgewichtsstörungen. Für den Fall, dass die Wahl des favorisierten Terrassentyps völlig zufällig von Statten ginge, wäre eine Erklärung aufgrund einer kinetischen Instabilität ausreichend, so wie sie Tanaka et al. [92] für eine biperiodische Struktur angeregt haben. Auf Grundlage der hier diskutierten Experimente konnte jedoch gezeigt werden, dass auf ein und derselben Probe immer der selbe Terrassentyp hinsichtlich eines Zerfalls bevorzugt ist. Zusätzlich liegt außerdem das Verhältnis der Zerfallsraten der beiden unterschiedlichen Terrassentypen für die selbe Probe immer in der gleichen Größenordnung. Von Probe zu Probe unterscheiden sich jedoch zum einen diese Zerfallsraten und zum anderen wechselt ebenfalls die Wahl des bevorzugten Terrassentyps scheinbar zufällig. Diese Ergebnisse deuten zusammengenommen ganz klar auf eine makroskopische Verspannung der Probe hin, die den Effekt des Pairings dann hinreichend erklären kann.

Zusammenfassend kann gesagt werden, dass es möglich ist Si-Hügel, die bei der Probenpräparation entstanden sind, wieder vollständig zu entfernen. Dazu muss

die Probe zunächst kurzzeitig so hoch erhitzt werden, dass sämtliche Kontaminationen desorbieren und anschließend bei moderaten Temperaturen zwischen 900°C und 950°C für einige Stunden ausgeheilt werden. Der asymmetrische Effekt des Pairings aufgrund von Verspannungen in der Probe beeinflusst zwar Details des Hügelzerfalls, ändert aber nichts an der Tatsache, dass der Hügel in dem genannten Temperaturbereich insgesamt schrumpft. Auch für die Quantität der im ersten Teil vorgestellten Ergebnisse spielt das Pairing keine Rolle, weil die angegebenen Zerfallsraten immer über eine Vielzahl an zerfallenen Terrassen bestimmt wurden und damit im Wesentlichen eine mittlere Zerfallsrate der beiden unterschiedlichen Terrassentypen darstellen.

Um auf den hier gezeigten Ergebnissen aufzubauen und weiterführende Experimente in diese Richtung durchzuführen, wäre als Ausblick sicherlich interessant, den Einfluss der Verspannung der Probe auf das Pairing detaillierter zu untersuchen. Zum einen stellt sich die Frage, wie genau sich die Asymmetrie als Funktion der Verspannung, und zum anderen als Funktion der Verspannungsrichtung verhält. Dazu müsste die Verspannung der Probe allerdings ganz gezielt beim Einbau in den Probenhalter eingestellt werden können. Dieses ist mit dem aktuellen Probenhalterdesign jedoch nicht möglich, sodass hierfür zumindest eine Überarbeitung des Probenhalter-Designs nötig wäre. Insbesondere die extremen Temperaturunterschiede zwischen dem Einbau der Probe, der Reinigungsprozedur ("Flashen") und dem Experiment selber, machen ein definiertes Voreinstellen der Verspannungsstärke ohnehin nahezu unmöglich. Optimal wäre also hierfür ein Probenhalter, an dem sich, beispielsweise mit Hilfe eines Piezos, *in-situ* während eines solchen Desorptionsexperimentes Stärke und Orientierung der Verspannung einstellen ließe.

Kapitel 4

Gold auf Si(001) bei hohen Temperaturen

4.1 Einleitung und Motivation

Nachdem im vorangegangenen Kapitel ausschließlich die Hochtemperaturkinetik einer reinen und sauberen Si(001)-Oberfläche untersucht wurde, soll im Folgenden der Einfluss der Deposition von Gold auf eben dieser Fläche im selben Hochtemperaturbereich analysiert werden. Dabei ist insbesondere wieder der Zerfall der beschriebenen Hügel- und Sattelstruktur unter dem Einfluss einer Gold-Deposition von Interesse. Wie sich zeigen wird, ist allerdings auch ganz allgemein die diskutierte Stufenfluktuation einer massiven Veränderung unter der Deposition von Gold unterworfen. Daher wird diese sowie der Einfluss auf die Domänengröße der Oberflächenrekonstruktion ebenfalls im Detail untersucht.

Gold wurde im Wesentlichen aus zwei verschiedenen Gründen als Depositionsmaterial gewählt. Zum einen gilt Au/Si(001) repräsentativ als das Standard-Interface-System für Untersuchungen an Metall/Halbleiter-Übergängen im Allgemeinen [99]. So wurde in den letzten Jahrzehnten sehr viel Forschung an diesem System betrieben und eine Reihe von guten Übersichten verfasst [99, 100, 101]. Zum anderen konnte immer wieder gezeigt werden, dass die Deposition von Gold die Oberflächenmorphologie massiv beeinflusst. Ein sehr gutes Beispiel ist diesbezüglich die goldinduzierte Facettierung von Si-Oberflächen [35]. Bereits geringe Mengen von Gold auf der Oberfläche führen dabei zur Ausbildung von mitunter

riesigen Facetten [34]. Mit dieser Art der Facettierung haben sich in den letzten Jahrzehnten ebenfalls einige Arbeitsgruppen beschäftigt. Eine sehr gute Übersicht ist in [102] zu finden.

Für die hier relevante Si(001)-Oberfläche konnte eine solche Facettierung allerdings nur für Fehlneigungen $>4^\circ$ beobachtet werden. Die für die Experimente in diesem Kapitel verwendeten Proben weisen jedoch alle eine deutlich geringere Fehlneigung auf, sodass davon auszugehen ist, dass es hier nicht zu einer Facettierung kommen wird. Zudem ist der hier untersuchte Temperaturbereich deutlich zu hoch. Typische Temperaturen, bei denen eine goldinduzierte Facettierung beobachtet werden kann, liegen zwischen etwa 600°C und 850°C [103, 104]. Die in diesem Kapitel vorgestellten Experimente wurden jedoch bei Temperaturen vergleichbar mit denen in Kapitel 3 (etwa 900°C bis 1200°C) durchgeführt. Auch die Goldbedeckung auf der Oberfläche dürfte aufgrund der nicht zu vernachlässigenden Desorption bei diesen Temperaturen deutlich geringer sein, als für eine Facettierung notwendig.

Dennoch sind die im Folgenden gezeigten Auswirkungen bereits kleinster Mengen Gold auf der Oberfläche dramatisch. Die Oberflächenentropie wird massiv erhöht, sodass Stufenkanten deutlich heftiger fluktuieren und letztlich die gesamte Morphologie der Oberfläche verändert wird. Diese Ergebnisse sind von fundamentaler Bedeutung für die Forschung an Au/Si(001) Interface-Systemen. So sind sie beispielsweise auch eine wichtige Grundlage, um die Physik der goldinduzierten Oberflächenfacettierung besser zu verstehen. Der anfängliche Mechanismus der Goldanlagerung ist derselbe und auch der Einfluss auf die hier untersuchte Stufenbewegung ist ein erster notwendiger Schritt in Richtung Facettierung, der bis heute nicht vollständig untersucht und verstanden wurde.

4.2 Deposition von Gold auf Si(001) – Experimentelle Daten

Auch wenn das Wachstum von Gold auf Si(001) in der Literatur bereits ausführlich untersucht sowie in Abschnitt 1.1.4 dieser Arbeit beschrieben wurde, sollen zunächst der Vollständigkeit halber eigene experimentelle Daten dieser Deposition gezeigt werden. Abbildung 4.1 zeigt drei LEEM-Bilder der Si(001)-Oberfläche

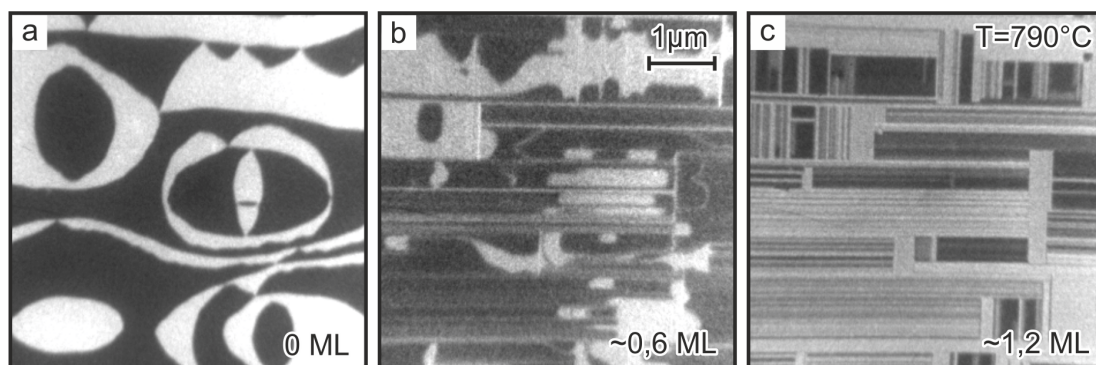


Abbildung 4.1: LEEM-Bilder der Si(001)-Oberfläche unter dem Einfluss steigender Gold-Bedeckung. Die Temperatur der Oberfläche liegt bei etwa 790°C und die gezeigten Bilder haben eine Breite von $5\text{ }\mu\text{m}$. Die Gold-Bedeckung beträgt in Bild (a) 0 ML , in (b) etwa $0,6\text{ ML}$ und in (c) etwa $1,2\text{ ML}$. Es ist deutlich zu erkennen, dass bereits Submonolagen Gold zu einer dramatischen Veränderung der Oberflächenmorphologie führen.

während der Deposition von Gold bei einer Temperatur von 790°C . Die entsprechend Abschnitt 1.1.4 kalibrierte Au-Bedeckung auf der Oberfläche steigt dabei von 0 Monolagen in Abbildung 4.1 (a), über $0,6$ Monolagen (b) bis zu etwa $1,2$ Monolagen (c). Die Adsorption von Gold auf der Oberfläche hat auch jenseits der Facettierung bei Proben mit geringen Fehlneigungen einen massiven Einfluss auf die Oberflächenmorphologie. Bereits eine Monolage Gold verändert die Oberfläche so drastisch, dass von der ursprünglichen Topografie nichts mehr zu erkennen ist. Deutlich ist auf dem letzten Bild (c) auch die beschriebene rechteckige Gold-Rekonstruktion entsprechend der diskutierten $(5 \times 3, 2)$ -Struktur mit den um 90° rotierten Domänen zu erkennen.

Entsprechend der Beobachtungen im Realraum sind auch im Beugungsbild unter dem Einfluss von Gold massive Veränderungen der Strukturen zu erwarten. Die Abbildung 4.2 (a) zeigt zunächst das bekannte LEED-Bild der sauberen Si(001)-Oberfläche bei einer Elektronenenergie von 25 eV und einer Temperatur von ebenfalls etwa 800°C . In rot markiert ist dabei einer der (2×1) -Spots, welcher unter anderem zur Dunkelfeld-Abbildung genutzt wird. Abbildung 4.2 (b) zeigt die Situation mit einer Au-Bedeckung von etwa $1,2$ Monolagen auf der Oberfläche (Entspricht Abbildung 4.1 (c) im Realraum). Das Beugungsbild hat sich deutlich verändert. Eine $(5 \times 3, 2)$ -Rekonstruktion ist daraus allerdings nicht sofort zu erkennen. Das liegt im Wesentlichen an der hohen Temperatur von 800°C . Untersuchungen haben gezeigt, dass die typische $(5 \times 3, 2)$ -Rekonstruktion im Beugungsbild nur bei Temperaturen bis etwa 760°C sichtbar ist [13]. Bei höhe-

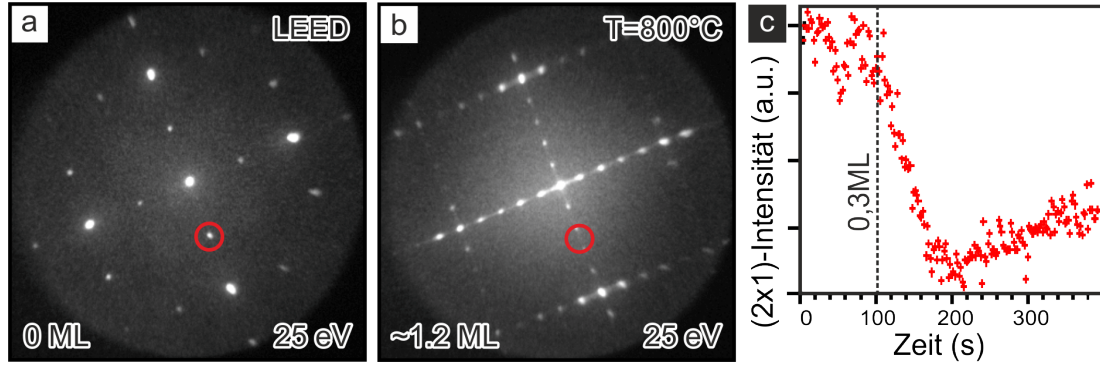


Abbildung 4.2: (a) und (b): LEED-Bilder der Si(001)-Oberfläche ohne (a) und mit etwa 1,2 ML Gold (b). Die Temperatur der Oberfläche beträgt etwa 800°C und die Bilder wurden bei einer Elektronenenergie von 25 eV aufgenommen. Der rot markierte (2×1) -Spot, der zur Realraumabbildung im Dunkelfeld-LEEM genutzt wird, ist im zweiten Bild bereits völlig verschwunden. (c): Intensitätsverlauf des markierten (2×1) -Spots als Funktion der Depositionszeit. Bei einer Bedeckung von 0,3 ML [13] ist ein deutlicher Einbruch der Intensität zu erkennen.

ren Temperaturen ist die Rekonstruktion zwar weiterhin vorhanden, es können wie in Abschnitt 1.1.4 beschrieben aber nur die (5×3) -Reflexe und nicht mehr die $(\sqrt{29} \times 3)$ -Reflexe beobachtet werden. Die Domänenwände der $(\sqrt{29} \times 3)$ -Einheitszellen sind bei diesen Temperaturen bereits vollständig “geschmolzen”, so dass die entsprechenden Reflexe im Beugungsbild fehlen [13]. Die rote Markierung in Abbildung 4.2 (b) zeigt wieder die Position des ursprünglichen Silizium (2×1) -Spots, der nun jedoch nicht mehr vorhanden ist. Wie genau sich die Intensität dieses exemplarisch gewählten Abbildungs-Spots als Funktion der Depositionszeit ändert, ist in Abbildung 4.2 (c) gezeigt. Nach einer relativ konstanten Phase bricht die Intensität plötzlich massiv ein. Zu diesem Zeitpunkt beträgt die Au-Bedeckung auf der Oberfläche gerade 0,3 Monolagen [13], sodass es entsprechend möglich ist, die Bedeckung mit Hilfe dieses Punktes zu kalibrieren. Die Intensität hat bei einer Bedeckung von etwa 0,6 Monolagen ihr Minimum erreicht und entspricht dort nur noch der diffusen Intensität des Hintergrundes. Dieser Wert der Bedeckung passt hervorragend zu der in Abschnitt 1.1.4 diskutierten Sättigungsbedeckung von ebenfalls 0,6 Monolagen [33] bzw. 0,62 Monolagen [34]. Der nachfolgende Anstieg der Intensität ist durch die Streifenbildung im Beugungsbild zu erklären; Ab diesem Zeitpunkt wird nicht mehr der wirkliche (2×1) -Spot gemessen, sondern andere, vom Gold ausgehende, Beugungsreflexe.

Der Einbruch der Intensität des (2×1) -Spots, bzw. damit korrespondierend auch des (1×2) -Spots, führt folglich zu einem völligen Kontrastverlust in der

LEEM Dunkelfeld-Abbildung. Da sämtliche Intensität eines Dunkelfeld-Bildes ausschließlich aus einem dieser beiden Reflexe resultiert, kann in diesem Modus ab einer Au-Bedeckung von eben diesen 0,6 Monolagen kein Realraumbild mehr erzeugt werden. Die in Abbildung 4.1 gezeigten LEEM-Bilder (b) und (c) konnten daher auch nur durch ein leichtes Verschieben der Auswahlblende im Impuls-Raum aufgenommen werden, wodurch benachbarte Gold-Beugungsreflexe ebenfalls zur Abbildung genutzt wurden. Wie später gezeigt werden wird, ist dieses jedoch für höhere Temperaturen nicht mehr so leicht möglich.

4.3 Einfluss der Gold-Adsorption auf den Zerfall isolierter Hügel und Sättel

Im Folgenden soll der Einfluss der Deposition von Gold auf die Ergebnisse aus Kapitel 3 diskutiert werden. Dabei wird zunächst auf die Auswirkungen auf den Hügel- und Sattelzerfall eingegangen, bevor schließlich allgemein der Einfluss auf den Aufrauungsphasenübergang erläutert wird.

4.3.1 Beschleunigung des Hügelzerfalls

Nachdem gezeigt werden konnte, wie massiv bereits Submonolagen Gold die Oberfläche verändern, stellt sich natürlich die Frage, ob auch der in Abschnitt 3.2.2 beobachtete und beschriebene Zerfall eines Si-Hügels in irgendeiner Weise durch Gold manipuliert wird. Dabei unterscheidet sich dieses Experiment von der Bilderserie in Abbildung 4.1 zum einen durch eine deutlich höhere Temperatur (Bei der entsprechend Abschnitt 3.2.2 ein solcher Hügel auch zerfällt.) und zum anderen durch eine deutlich geringere Depositionsrate; Hier interessiert schließlich nicht der Endzustand, sondern vielmehr die Oberflächenkinetik nahe der kritischen Bedeckung, bei welcher der Kontrast verloren geht.

Abbildung 4.3 zeigt eine Bilderserie solch eines Experimentes bei einer Temperatur von 920°C. In dieser Bilderserie ist kein Sattel, sondern lediglich der Hügel zu sehen. Davon ist darüber hinaus aufgrund der enormen Höhe und der damit verbundenen eng beieinander liegenden Stufen, auch nur die jeweils obersten Ter-

rassen zu erkennen. Der Kontrast wurde für jedes Bild einzeln angepasst und das deutlich zu erkennende Rauschen bewusst nicht unterdrückt, um keine Details zu verlieren. Zudem sind die Zeitintervalle von Bild zu Bild nicht äquidistant. Vielmehr wurden analog zu Abbildung 3.8 wieder die letzten Bilder gewählt, auf denen die jeweils obersten Terrassen gerade noch zu sehen sind. Zwischen jeweils aufeinander folgenden Bildern ist also genau eine Monolage zerfallen. Die verstrichene Gesamtzeit in Hinblick auf Bild (a) dieser Bilderserie ist dabei in jedem einzelnen Bild eingetragen. Zunächst befindet sich noch kein Gold auf der Oberfläche und es ist zu erkennen, dass der Hügel im Wesentlichen so zerfällt, wie im letzten Kapitel beschrieben ((a) - (c)). Nicht nur der Lage-für-Lage-Zerfall, sondern auch ein sehr starkes "Pairing" ist deutlich zu beobachten. So benötigt die erste weiße Terrasse etwa 230 s für den vollständigen Zerfall ((a) - (b)), wohingegen die folgende schwarze nur etwa 8 s benötigt ((b) - (c)). Auch bei dieser Bilderserie ist der Zeitnullpunkt wieder willkürlich gewählt. So zeigen die ersten drei Bilder nur exemplarisch die Situation vor der Gold-Adsorption, in der die Zerfallszeit zweier aufeinander folgender Terrassen im Mittel etwa vier Minuten beträgt.

Ab dem Bild 4.3 (c) wird jetzt der Verdampfer geöffnet und es wird zunächst mit einer konstanten Rate Gold auf der Oberfläche deponiert. Eine genaue Bedeckung der Oberfläche mit Gold kann, wie erwähnt, nicht so leicht angegeben werden, da es sich aufgrund der hohen Temperaturen die gesamte Zeit um einen Mischprozess aus Deposition und Desorption handelt, der mit Hilfe von Ratengleichungen beschrieben werden müsste. In Folge der Golddeposition geht zunächst, wie im letzten Abschnitt beschrieben, der Kontrast nahezu komplett verloren. Dieser Zeitpunkt könnte nun zur Kalibrierung der Gold-Bedeckung genutzt werden. Jedoch macht dieses nur bei einer weiterhin konstanten Depositionsrate Sinn, was im Folgenden allerdings nicht länger der Fall sein wird. Um nämlich eine Situation zu erreichen, bei der sich auf der einen Seite möglichst viel Gold auf der Oberfläche befindet, der Kontrast auf der anderen Seite allerdings noch ausreichend ist, um ein Bild zu erzeugen, ist es notwendig die Depositionsrate zunächst zu reduzieren und anschließend so zu justieren, dass sich ein Gleichgewicht aus Desorption und Deposition kurz vor der kritischen Bedeckung des Kontrastverlustes einstellt. In Abbildung 4.3 wurde diese Situation ausreichend gut zwischen den Bildern (d) und (e) erreicht, sodass es nachfolgend möglich ist, den Hügelzerfall in der Nähe dieses kritischen Punktes zu beobachten.

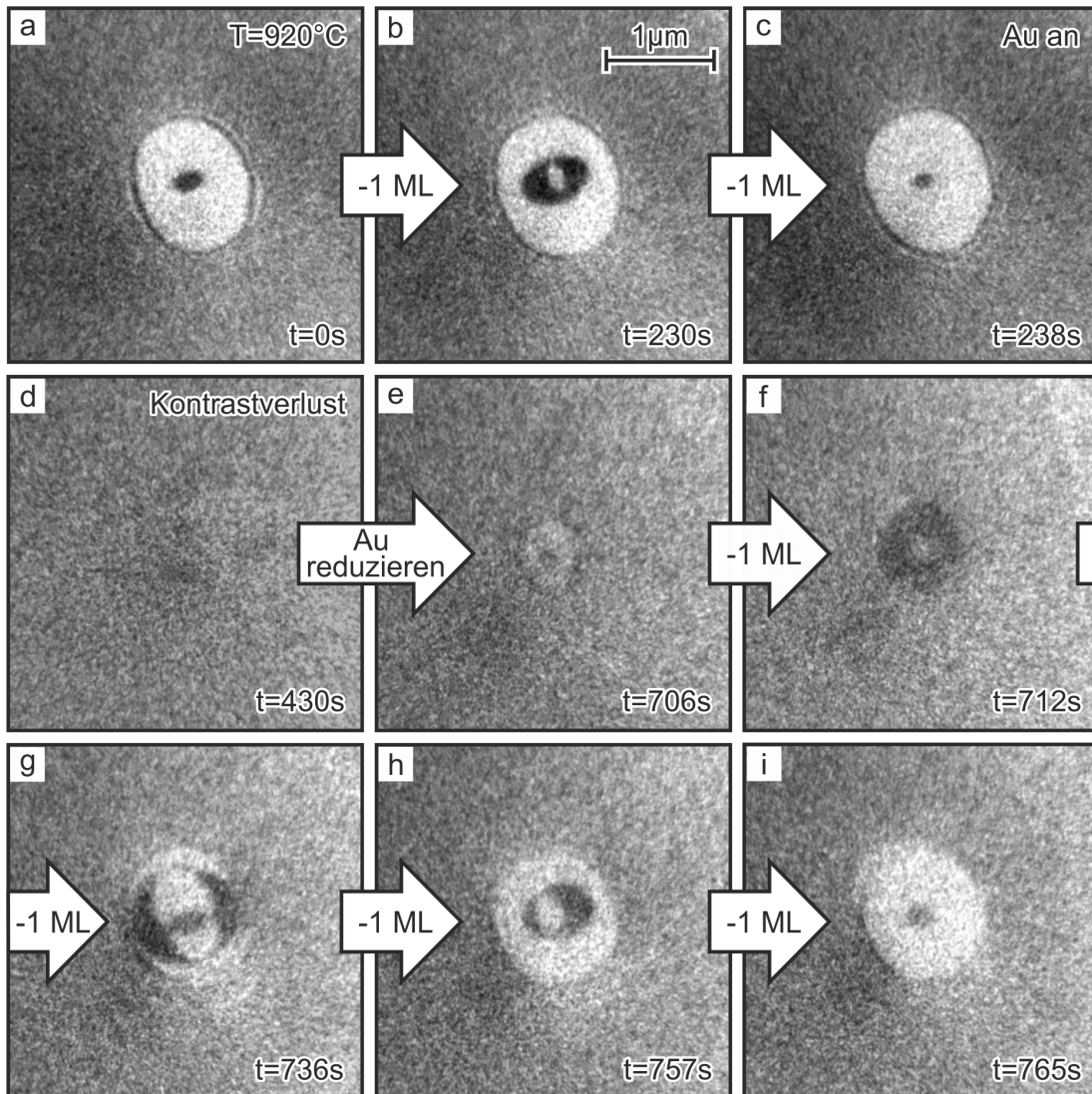


Abbildung 4.3: Bilderserie des Zerfalls eines Si-Hügels unter dem Einfluss der Gold-Adsorption. Die Oberflächentemperatur liegt bei etwa 920°C und die Breite eines Bildes beträgt $3\text{ }\mu\text{m}$. (a) - (c): Ohne Gold auf der Oberfläche zerfällt der Hügel wie zuvor Lage-für-Lage und mit einer mittleren Zerfallszeit von etwa vier Minuten für eine Bi-Lage (zwei aufeinanderfolgende Terrassen). (d): Infolge der Deposition von Gold verschwindet zunächst der Kontrast vollständig. (e): Durch Justage des Verdampfers kann eine Gleichgewichtssituation aus Desorption und Deposition von Gold kurz vor der kritischen Bedeckung des Kontrastverlustes eingestellt werden. (e) - (i): In nur 59 s zerfallen zwei Bi-Lagen des Hügels vollständig. Es kann somit eine deutliche Beschleunigung des Hügelzerfalls um den Faktor acht in Folge der Gold-Adsorption festgestellt werden.

Die folgenden Bilder (e) bis (i) zeigen wiederum den Lage-für-Lage-Zerfall des Hügels, an dem sich qualitativ trotz der Goldadsorption nichts verändert hat. Bei Betrachtung der Zeitintervalle fällt allerdings auf, dass sich dieser Zerfall nun aber auf viel kürzeren Zeitskalen abspielt. Von Bild (e) nach (f) der Serie zerfällt wieder eine weiße Terrasse, die dafür jetzt allerdings nur noch etwa 6 s benötigt. Die nachfolgende schwarze Terrasse zerfällt hingegen in 24 s ((f) - (g)), gefolgt von der nächsten weißen in 21 s ((g) - (h)) und der folgenden schwarzen in nur etwa 8 s ((h) - (i)). Insgesamt sind in diesen 59 s von Bild (e) bis Bild (i) ganze vier Terrassen zerfallen. Dafür brauchte es vor der Gold-Deposition im Durchschnitt noch etwa acht Minuten. Es kann daher festgehalten werden, dass die Deposition von Gold auf der Oberfläche den Zerfall eines Hügels beschleunigt. In dem in Abbildung 4.3 gezeigten Experiment konnte eine Beschleunigung um etwa den Faktor acht verifiziert werden.

Um diesen beschleunigten Hügelzerfall genauer untersuchen zu können, ist in Abbildung 4.4, in Anlehnung an die Abbildung 3.10 ohne Gold, wieder ein Schnitt durch den Hügel als Funktion der Zeit aufgetragen. Die genaue Lage dieses Schnittes A-B ist auch hier wieder im Inset oben rechts in der Abbildung zu erkennen (rote gestrichelte Linie). Im Wesentlichen ist also der Radius der obersten Terrassen als Funktion der Zeit aufgetragen. Bei der dargestellten Messung handelt es sich um dasselbe Experiment, wie in Abbildung 4.3, das bei einer Temperatur von etwa 920°C durchgeführt wurde. Lediglich der Zeitnullpunkt ist ein anderer und aus Gründen der besseren Übersicht auch hier wieder willkürlich festgelegt. Bis etwa zur Hälfte der Zeitachse entspricht der Zerfall qualitativ gut dem in Abbildung 3.10 gezeigten. Es ist deutlich ein sehr starkes "Pairing" zu erkennen und die oben genannte durchschnittliche Zerfallszeit zwei aufeinander folgender Terrassen von etwa vier Minuten ist ebenfalls gut zu erkennen. Nach 540 s wird schließlich mit der Deposition von Gold begonnen, was etwa 200 s später den oben diskutierten, vollständigen Kontrastverlust zur Folge hat. Noch vor diesem Punkt ist jedoch bereits deutlich eine Reduzierung der Zerfallszeit in Folge der Gold-Adsorption zu beobachten. Insbesondere an dieser Stelle war ein beschleunigter Zerfall in der obigen Bilderserie (Abbildung 4.3) noch nicht zu erkennen. Sobald schließlich der Kontrast verloren gegangen ist, wird, wie oben beschrieben, die Depositionsrate zunächst reduziert und im Folgenden versucht so zu justieren, dass sich das angesprochene Gleichgewicht zwischen Desorption und Adsorption kurz vor der kritischen Bedeckung einstellt.

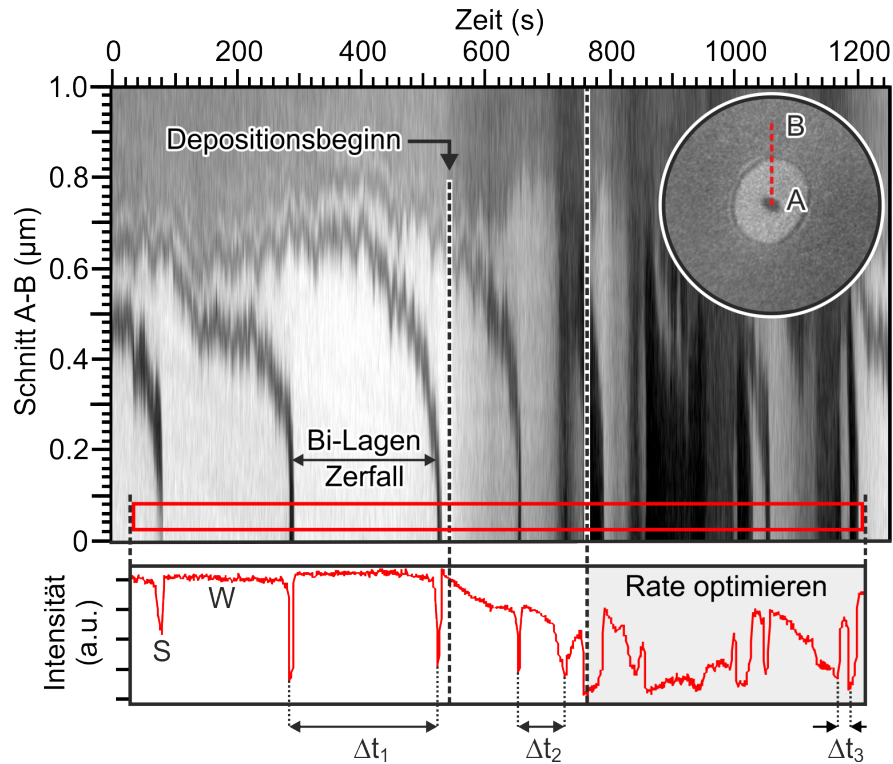


Abbildung 4.4: Schnitt durch das LEEM-Bild eines bei etwa 920°C zerfallenden Hügels vom Mittelpunkt des Hügels (A) nach Außen (B) als Funktion der Zeit. Die genaue Lage des Schnittes ist im Inset oben rechts zu erkennen (rote Linie). Die untere Kurve zeigt zur besseren Auswertung die Grauwerte eines Linienprofils entlang des rot markierten Bereichs in der Hauptabbildung. In beiden Auftragungen ist direkt nach Beginn der Golddeposition eine deutliche Beschleunigung des Hügelzerfalls zu erkennen. Nach dem Verlust des Kontrastes wurde die Depositionsrate zunächst reduziert und im Folgenden optimiert (grauer Bereich). Nahe der kritischen Bedeckung ist eine Analyse der Zerfallszeiten schwierig. Dennoch konnte für das Verhältnis der mittleren Zerfallsraten einer Bi-Lage ohne (Δt_1) und mit Gold (Δt_3) eine maximale Beschleunigung um etwa den Faktor neun bestimmt werden.

Für den weiteren Verlauf des Experimentes sind die Zerfälle der nachfolgenden Terrassen in der Auftragung aus Abbildung 4.4, aufgrund des deutlich verschlechterten Kontrastes und der ebenfalls deutlich erhöhten Fluktuationen, nur schwer erkennbar. Daher ist im unteren Teil der Abbildung ein Linienprofil durch den oberen Teil nahe des Hügelmittelpunktes (rot gekennzeichneten Bereich) gezeigt. Dieses Linienprofil stellt die (über die Breite des Bereichs gemittelten) Grauwerte als Funktion der Zeit dar und zeigt daher im Wesentlichen, ob sich oben auf dem Hügel gerade eine weiße (W) oder eine schwarze (S) Terrasse befindet. Ebenfalls sind in diesem Graphen, analog zur Hauptabbildung, die Zeitpunkte “Depositionsbeginn” und der Beginn des (grau hinterlegten) Bereichs “Rate optimieren” durch

vertikal gestrichelte Linien gekennzeichnet. Bei jedem Einbruch ist entweder der Kontrast nicht mehr vorhanden, oder es befindet sich kurzzeitig eine schwarze Terrasse oben auf dem Hügel. Der Unterschied ist allerdings erkennbar, da ein Kontrastverlust in der Regel länger andauert, einen tieferen Einbruch verursacht und vor allem in der oberen Auftragung der Abbildung einen vertikalen schwarzen Strich über die gesamte Position des Schnittes zur Folge hat. Der Abstand zweier aufeinander folgender Einbrüche durch eine schwarze Top-Terrasse ist gerade die Zeit, in der eine Bi-Lage, also zwei aufeinander folgende Terrassen, zerfallen sind. Eine solche, bereits diskutierte, typische Zerfallszeit ohne Gold auf der Oberfläche ist in der Abbildung mit $\Delta t_1 = 241 \text{ s}$ bezeichnet. Es ist deutlich zu erkennen, dass die Adsorption von Gold direkt zu einer sinkenden Intensität und zu einer Verkürzung der Einbruch-Abstände führt. Kurz vor Verlust des Kontrastes kann als Zerfallszeit einer Bi-Lage eine zeitliche Differenz von nur noch $\Delta t_2 = 73 \text{ s}$ gemessen werden. Noch dramatischer ist die Situation in den nachfolgenden etwa 400 s während die Rate permanent optimiert wird. Zwar ist hier eine Unterscheidung der beiden verschiedenen Einbruch-Arten schwierig, weil der Kontrast mehrfach verloren geht, bei genauerer Betrachtung ist eine weitere Verkürzung der Zerfallszeiten allerdings durchaus festzustellen. Als exemplarische Zerfallszeit einer Bi-Lage des Hügels in diesem Regime der maximal noch beobachtbaren Goldbedeckung, ist ein Wert von $\Delta t_3 = 26 \text{ s}$ gefunden und in der Abbildung gekennzeichnet worden. Ein Vergleich mit Δt_1 ergibt demnach eine Beschleunigung des Hügelzerfalls durch die Adsorption von Gold um etwa den Faktor neun.

Die gezeigten Daten befinden sich bereits an der Grenze des experimentell Möglichen, was eine Beschreibung und Erklärung der quantitativen Analyse, insbesondere in dem Bereich nach der Kontrastwiederkehr, schwierig gestaltet. Da es experimentell nicht möglich ist, bessere Datensätze zu extrahieren, sollen abschließend, zum besseren Verständnis, die Ergebnisse des gezeigten Experiments noch einmal mit Hilfe einer fiktiven Kurve der Modellvorstellung erläutert werden. Abbildung 4.5 zeigt diese Kurve, die sich in Anlehnung an Abbildung 3.8 aus Abschnitt 3.4.1 orientiert. Zeitabhängig aufgetragen ist diesmal jedoch die Gesamtfläche zweier aufeinanderfolgender Terrassen, wodurch das “Pairing” unberücksichtigt bleiben kann. Die mit (a) bis (i) bezeichneten Zeitpunkte entsprechen gerade den Situationen der äquivalent in Abbildung 4.3 gezeigten Bildern. Ebenfalls sind die mit Δt_1 bis Δt_3 bezeichneten Zerfallszeiten analog zu denen in Abbildung 4.4 gewählt worden. Der gezeigte schematische Verlauf verdeut-

4.3.2 Einfluss auf den Sattelzerfall

Nachdem im letzten Abschnitt gezeigt werden konnte, dass die Deposition von Gold auf der Si(001)-Oberfläche den in Kapitel 3 diskutierten Zerfall eines Si-Hügels beschleunigt, ist davon auszugehen, dass selbiger Prozess ebenfalls den Zerfall des Sattelpunktes beeinflusst. Um diese Vermutung zu verifizieren, sind mehrere Experimente analog zu dem in Abbildung 4.3 gezeigten durchgeführt worden. Da entsprechend Abschnitt 3.3.2 der Sattel generell allerdings erst bei höheren Temperaturen anfängt zu zerfallen, lag die Temperatur bei diesen Experimenten in der Regel über 1000°C. Bei diesen, im Vergleich zum letzten Abschnitt, höheren Temperaturen, ist das Einstellen einer Gleichgewichtssituation unterhalb des kritischen Punktes des Kontrastverlustes deutlich schwieriger. Insgesamt konnte bei der Auswertung mehrerer Experimente jedoch keine signifikante Änderung der Zerfallsrate des Sattels festgestellt werden. Da diese Messmethode allerdings durch die immer vorhandenen und relativ großen Schwankungen der Zerfallskonstante begrenzt ist, könnte auf diese Weise ohnehin nur eine Änderung der Rate aufgelöst werden, welche mindestens dem Faktor zwei entspricht.

Um nun aber auch geringfügigere Beschleunigungen der Zerfallsrate experimentell feststellen zu können, ist eine andere Methode gewählt worden: Die Temperatur ist dabei genau so eingestellt worden, dass der beobachtete Sattelpunkt kurz vor dem Zerfallen ist, aber eben gerade noch nicht zerfällt. Entsprechend Abbildung 3.4 ist dafür eine Temperatur von etwa 940°C zu wählen gewesen. Es ist davon auszugehen, dass diese Konstellation nun sehr sensitiv auf potentielle Erhöhungen der Zerfallsrate reagiert. Ein nur minimaler Anstieg der Temperatur oder eben die Deposition von Gold auf diesen Sattel sollten folglich den Beginn dessen Zerfalls auslösen. Letztes konnte allerdings auch in mehreren Experimenten nicht beobachtet werden. Entweder wird die Zerfallsrate am Sattel im Gegensatz zum Hügel also nicht beschleunigt oder eine solche Beschleunigung konnte einzig mit den gezeigten Methoden nicht gemessen werden. Dieses soll zusammen mit der Erklärung für den beschleunigten Hügelzerfall im nächsten Abschnitt diskutiert werden.

4.3.3 Oberflächeneutektikum und Reduktion der Aufrauungstemperatur

Um die in den letzten Abschnitten beobachteten Ergebnisse erklären zu können, ist es nötig die Anfänge der Gold-Adsorption auf der Oberfläche genauer zu verstehen. In Abschnitt 1.1.4 sind zwar die Grundlagen des Wachstums von Gold auf Si(001) diskutiert worden, allerdings wurde dort im Wesentlichen auf die verschiedenen Rekonstruktionen bei unterschiedlichen Temperaturen eingegangen. Auch die zitierten Arbeiten zur goldinduzierten Facettierung beschäftigen sich ausschließlich mit dem Endzustand und untersuchen Art, Orientierung und Größe der Facetten. Warum es überhaupt zu einer Facettierung kommt ist in diesen Arbeiten hingegen nie hinreichend untersucht worden. Daher stellt sich hier zunächst die Frage, wie genau die Goldatome auf der Oberfläche mit dieser wechselwirken.

Experimentelle Untersuchungen haben gezeigt, dass bereits einzelne Goldatome in der Lage sind auf Si(001) die Oberflächenrekonstruktion bzw. die (π -) Dimerbindungen aufzubrechen und Bindungen mit den Silizium Oberflächenatomen einzugehen [105]. Diese experimentellen Befunde sind zudem theoretisch bestätigt worden [106]. Bei den entstehenden hetero-atomaren Bindungen handelt es sich um metallische Bindungen, sodass auf der Oberfläche Gold-Silizium Silizide gebildet werden [107, 108, 109]. Im hier relevanten Temperaturbereich ist allerdings davon auszugehen, dass die Goldatome auf den einzelnen Terrassen dabei so mobil sind, dass diese zunächst quasifrei über die Terrassen diffundieren können und sich dann im Wesentlichen an den Stufenkanten anlagern. Dort stehen den Goldatome mehr Bindungspartner zur Verfügung, sodass diese Positionen energetisch bevorzugt sind [49]. Erst bei höheren Au-Bedeckungen werden auch die Terrassen von Gold bedeckt. Insgesamt ergibt sich auf diese Weise schließlich die in Abschnitt 1.1.4 diskutierte Sättigungsbedeckung der obersten Lage von etwa 0,62 Monolagen. In anderen Arbeiten ist auch von einer Durchmischung von Gold und Silizium in der obersten Lage die Rede. Die Goldkonzentration wird darin auf $67\% \pm 7\%$ beziffert und ist im hier relevanten Temperaturbereich als konstant bestimmt worden [110].

Für die Deposition von Gold auf Si(111) haben AES- und EELS-Untersuchungen (Elektronenenergieverlustspektroskopie) eine Zusammensetzung dieser amorphen Oberflächendurchmischung von 81% Au und 19% Si gezeigt [108]. Diese Komposi-

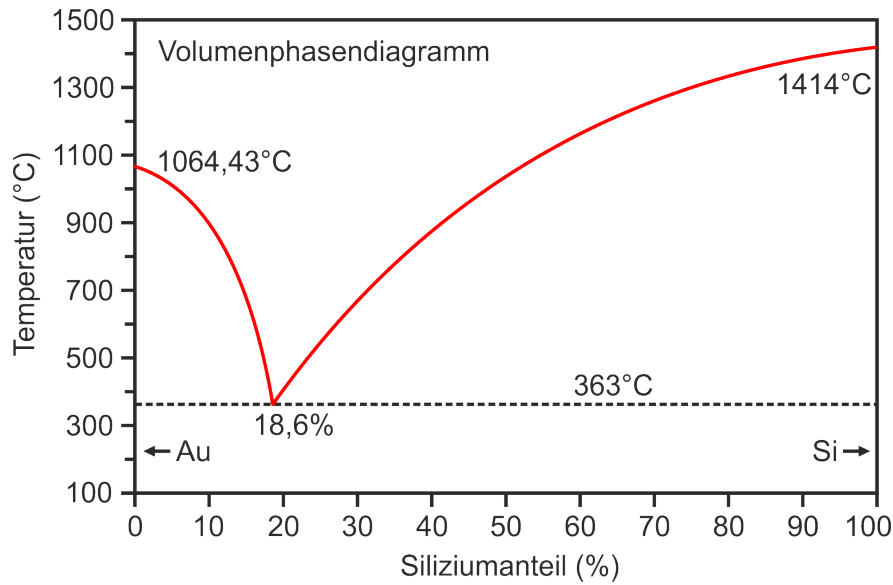


Abbildung 4.6: Phasendiagramm für eine Legierung aus Gold und Silizium. Der Schmelzpunkt dieser Durchmischung ist als Funktion der Siliziumkonzentration angegeben. Im Vergleich zum Schmelzpunkt von reinem Gold (1064°C) bzw. reinem Silizium (1414°C) bildet eine Legierung dieser beiden Materialien ein Eutektikum mit einem deutlich geringeren Schmelzpunkt, der am sogenannten eutektischen Punkt bei einer Si-Konzentration von etwa 19% mit nur etwa 363°C sein Minimum findet. Abbildung in Anlehnung an [111].

tion entspricht gerade der am eutektischen Punkt von Gold und Silizium [111], so dass auch im Fall der Deposition von Gold auf Si(001) davon ausgegangen werden muss, dass sich eine Art Oberflächeneutektikum bilden kann [112, 113, 114]. Abbildung 4.6 zeigt das Phasendiagramm von einer Gold-Silizium Durchmischung als Ergebnis einer Reihe von unterschiedlichen Analysen [111]. Die Temperatur des Phasenübergangs fest/flüssig wird offenbar durch eine Mischung der beiden Materialien abgesenkt, sodass in der oben genannten Zusammensetzung mit 363°C ein ausgeprägtes Minimum erreicht wird. Dabei ist allerdings zu beachten, dass das in Abbildung 4.6 gezeigte Phasendiagramm für eine 3D Legierung aus den beiden Materialien bestimmt wurde. Insbesondere die Temperaturachse kann also nicht ohne Weiteres auf den Fall einer 2D Durchmischung an der Oberfläche übertragen werden. Die Ausbildung eines solchen Eutektikums führt aber in jedem Fall zu einer lokalen Absenkung des Schmelzpunktes. Folglich kann mit Hilfe dieses Erklärungsansatzes auch der in Abschnitt 4.3.1 diskutierte beschleunigte Zerfall eines Hügels durch die Adsorption von Gold verstanden werden. Die in Kapitel 3 diskutierten physikalischen Mechanismen ändern sich dann prinzipiell zwar nicht, allerdings verhält sich die Oberfläche so, als wäre die Temperatur

deutlich höher als in der Realität. Wird in diesem Zusammenhang noch einmal die Abbildung 3.4 betrachtet, so kann die Zerfallsrate des Hügels bei einer Temperatur von 920°C (wie in dem Experiment aus Abbildung 4.3) zu etwa 0,005 Lagen/s bestimmt werden. Dieser Wert stimmt im Rahmen des Fehlers gut mit den aus Abbildung 4.3 gewonnenen zwei Lagen in etwa vier Minuten überein (0,008 Lagen/s). Unter dem Einfluss der Gold-Adsorption ist nun eine achtfach erhöhte Zerfallsrate beobachtet worden, was in etwa 0,04 - 0,064 Lagen pro Sekunde entspricht. Korrespondierend zu Abbildung 3.4 entspricht dies gerade der Zerfallsrate ohne Gold auf der Oberfläche bei einer Temperatur von etwa 1020°C bis 1040°C. Es kann also zusammengefasst werden, dass die Adsorption von Gold bei dem in Abschnitt 4.3.1 gezeigten Experiment auf den Hügelzerfall wie eine Erhöhung der Oberflächentemperatur von 100 bis 120 K wirkt.

Doch nicht nur auf den Zerfall des Hügels wirkt sich die Ausbildung eines Eutektikums wie oben beschrieben aus. Die gesamte Stufenkinetik ist dadurch zu höheren Temperaturen hin verschoben. Im Wesentlichen wird die Stufen- und Oberflächenentropie erhöht und die Adsorption von Gold wirkt folglich wie eine Verringerung der in Abschnitt 1.2.2 eingeführten kritischen Temperatur T_R des Aufrauungsphasenübergangs. Sowohl an den Stufenkanten, als auch auf den Terrassen ist die Kinkenenergie verringert und Si-Atome können sich leichter von dort lösen und diffundieren. Zunächst führt dieser Effekt an den Stufen zu einer verstärkten Fluktuation, die auch beobachtet wurde und in Abschnitt 4.4.1 diskutiert wird. Bei noch höheren Goldbedeckungen führt der Effekt schließlich auch auf den Terrassen zu einer früheren Aufrauung der Oberfläche, wodurch der Intensitätseinbruch der LEED-Spots und der damit einhergehende Kontrastverlust im Dunkelfeld-LEEM erklärt werden kann. Eine solche Absenkung der Aufrauungstemperatur von Si(001) ist für dünne Germanium Filme bereits 2000 von Maxson et al. beobachtet und als neuer Typ eines Aufrauungsphasenübergangs beschrieben worden [115].

Auf den Zerfall des Sattels scheint dieser Effekt allerdings keinen Einfluss zu haben. Grund dafür könnte folgender Erklärungsansatz sein: Durch die oben genannte Reduktion der kritischen Temperatur des Aufrauungsphasenübergangs wirkt auch der Gibbs-Thomson-Effekt aufgrund der stärkeren Stufenfluktuationen bereits bei geringeren Temperaturen überall auf der Oberfläche in gleicher Weise (siehe hierfür auch Abschnitt 3.3.2). Der Übergang von dem Bereich der Diffusion zu dem der Desorption bleibt jedoch erhalten und befindet sich weiter-

hin bei einer Temperatur von etwa 1040°C. Zwar können sich durch die Bildung eines Oberflächeneutektikums die Silizium-Oberflächenatome unter dem Einfluss von Gold bereits bei tieferen Temperaturen lösen und sich auf der Oberfläche bewegen, der Übergang in die gasförmige Phase und damit ins Vakuum muss allerdings nicht zwangsweise begünstigt sein. Der Sattelpunkt zerfällt also trotz der Verringerung der kritischen Aufrauungstemperatur nicht früher, weil im Prinzip die ganze Zeit auch Material zum Sattel hin “nachfließt”. Der Sattel befindet sich in einem statischen Gleichgewicht aus Zerfallen (Gibbs-Thomson-Effekt) und dem Nachdiffundieren von Si-Atomen von höher gelegenen Terrassen. Auf diese Weise können insbesondere die beiden verschiedenen Übergänge zwischen dem Bereich, in dem der Gibbs-Thomson-Effekt nur für den Hügel eine Rolle spielt und dem, in dem er auf alle Stufen gleich wirkt, und dem zwischen Diffusionsregime und Desorptionsregime getrennt werden. Diese Trennung war auf einer reinen Si(001)-Oberfläche nicht möglich.

4.3.4 Einfluss auf den Pairing-Effekt

Nachdem in den letzten Abschnitten der Einfluss von Gold-Adsorption auf die Zerfallsgeschwindigkeit von Hügel und Sattel diskutiert und erklärt wurde, stellt sich abschließend noch die Frage, inwieweit sich Gold auch auf den erläuterten Pairing-Effekt auswirkt. Entsprechend der oben diskutierten Erklärung mit Hilfe einer reduzierten Aufrauungstemperatur ist zu erwarten, dass das Verhältnis der Zerfallsraten jeder zweiten Lage von der Deposition von Gold unbeeinflusst ist. Um diese Erwartung zu verifizieren, ist es enorm wichtig den Gold-Verdampfer so zu justieren, dass sich wirklich über einen langen Zeitraum die besagte Gleichgewichtssituation aus Desorption und Deposition einstellt. In der Praxis erweist sich dies jedoch als äußerst schwierig, sodass bei diesen Messungen der Fehler im Vergleich zu den vorangegangenen Messungen durch die fehlende Mittelung über zwei Lagen (Bi-Lage) nochmals größer ist. Abbildung 4.7 zeigt die Ergebnisse dieses Experimentes. Aufgetragen ist das Verhältnis der Zerfallszeit einer schwarzen zu einer weißen Terrasse für unterschiedliche Leistungen des Au-Verdampfers. Dieses Verhältnis ist ein Maß für die Stärke des Pairings. Die Verdampferleistung korreliert mit der sich einstellenden Gleichgewichts-Goldbedeckung auf der Oberfläche. Durch die Temperatur von etwa 1030°C konnte der Hügelzerfall auch

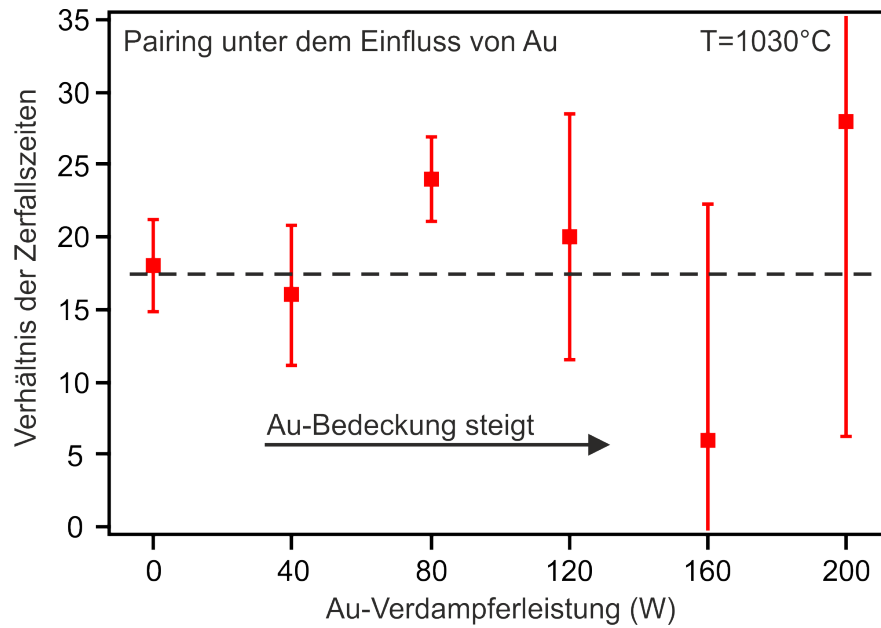


Abbildung 4.7: Einfluss der Au-Adsorption auf den Pairing-Effekt. Aufgetragen ist das Verhältnis der Zerfallszeit jeder zweiten Terrasse für unterschiedliche Leistungen des Au-Verdampfers. Die Datenpunkte wurden für dieselbe Probe bei einer konstanten Temperatur von etwa 1030°C bestimmt. Die statistischen Fehlerbalken ergeben sich aus der Anzahl der für einen Datenpunkt gezählten Terrassenzerfälle sowie der Streuung der Zerfallszeiten. Es ist kein signifikanter Einfluss der Deposition von Gold auf die Stärke des Pairings zu beobachten.

noch bei einer konstanten Verdampferleistung von etwa 200 W gut beobachtet werden. Die eingezeichneten Fehlerbalken ergeben sich aus der Anzahl der für einen Datenpunkt gezählten Terrassenzerfälle und der Streuung der Zerfallszeiten. Mit zunehmender Goldbedeckung nimmt folglich auch der Fehler deutlich zu. Im Rahmen dieses Fehlers kann auf derselben Probe keine signifikante Änderung des Verhältnisses der Zerfallszeiten jeder zweiten Lage beobachtet werden. Es kann daher zusammenfassend gesagt werden, dass die Adsorption von Gold auf Si(001) keinen Einfluss auf den beschriebenen Pairing-Effekt hat.

4.4 Manipulation der Stufenkinetik und Oberflächendomänen

4.4.1 Erhöhung der Stufenfluktuationen

Entsprechend der in Abschnitt 4.3 vorgestellten Ergebnisse und der dort diskutierten Erklärung einer reduzierten Aufrauungstemperatur ist ebenfalls ein deutlicher Einfluss der Adsorption von Gold auf die Kinetik von Stufen allgemein zu erwarten. Um einen solchen Einfluss auf einzelne Stufen möglichst gut beobachten zu können, wurden die im Folgenden gezeigten Experimente an wohl orientierten Proben mit einer Fehlneigung von weniger als 0,02% vorgenommen. Auf diesen Proben finden sich Terrassen mit einer Breite von teilweise über einem Mikrometer, sodass für die Analyse der Stufenkinetik die Isolation einzelner Stufen gegeben ist und damit der Einfluss der umgebenden Stufen nahezu ausgeschlossen werden kann.

Abbildung 4.8 (a) zeigt ein LEEM-Bild solch einer hoch orientierten Si(001)-Oberfläche bei einer Temperatur von etwa 860°C. Unter den hier verwendeten Abbildungsbedingungen dominiert die weiße Rekonstruktionsdomäne, wohingegen der schwarze Terrassentyp relativ schmal ist. Gründe für die Dominanz einer der beiden Domänen werden im nächsten Abschnitt erläutert. In dem gezeigten Bild liegen entsprechend immer zwei Einzelstufen relativ nah beieinander. Es handelt sich aber weiterhin um Einzelstufen und noch nicht um Doppelstufen. Lediglich an der “Kissing Site” [116] im unteren rechten Bildabschnitt, wo sich zwei schwarze Terrassen berühren, hat sich lokal eine Doppelstufe ausgebildet. Der bereits diskutierte Unterschied in der Rauigkeit zwischen S_A und S_B Stufen ist hier nicht eindeutig zu erkennen [17]. Beide Stufentypen sind relativ gerade und die lokale Krümmung kann als gering angesehen werden. Die gewählte Temperatur von etwa 860°C befindet sich am unteren Ende des hier untersuchten Hochtemperaturbereichs und die gezeigte Oberflächentopografie ist folglich über einen langen Zeitraum konstant. Ein Bild mehrere Sekunden früher oder später sähe nahezu identisch aus (und wird daher hier auch nicht explizit gezeigt). Das bedeutet, dass eine Bewegung der Stufen auf der hier relevanten Zeitskala vernachlässigt werden kann.

Die Bilder (b) und (c) in Abbildung 4.8 zeigen den Einfluss der Adsorption von

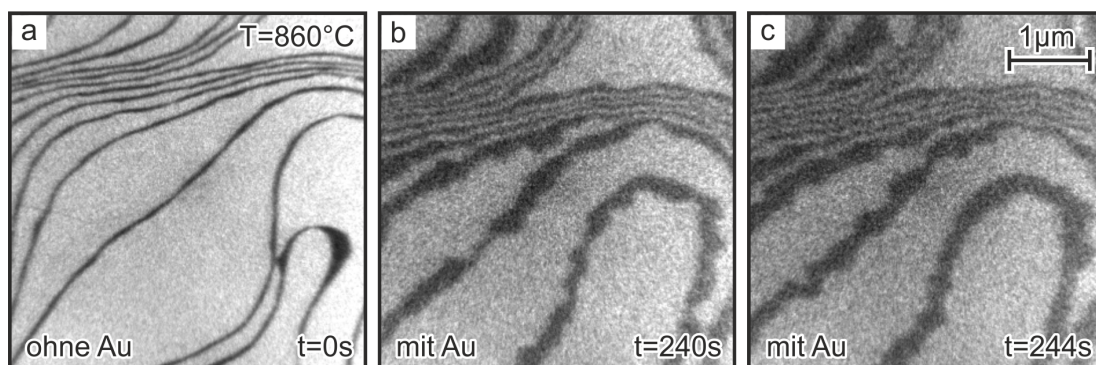


Abbildung 4.8: Stufenbewegung unter dem Einfluss der Gold-Adsorption bei einer konstanten Temperatur von etwa 860°C. Die Breite eines Bildes beträgt etwa 3 µm. (a) Hoch orientierte Si(001)-Oberfläche mit zwei weitgehend isolierten Einzelstufen in der Mitte. Alle Stufen verlaufen relativ gerade und sind zeitlich als nahezu statisch zu bezeichnen. (b) Dieselbe Stelle der Oberfläche bei identischer Temperatur mit einer Goldbedeckung von geschätzten 0,3 Monolagen (240 s nach der Situation in Bild (a)). Die Stufen verlaufen nun deutlich gekrümmter und das ganze Bild erscheint verrauschter im Vergleich zu (a). (c) Nur vier Sekunden später hat sich die Form der Stufen schon deutlich verändert. Das schließt auf eine Bewegung der Stufen, die durch weitere Bilder dieses Experimentes als signifikante Stufenfluktuationen ausgemacht werden können.

Gold auf die in (a) gezeigten Stufen bei konstanter Temperatur. Aufgrund von thermischer Drift, die hier nicht vollständig korrigiert werden konnte, hat sich der beobachtete Bereich der Oberfläche in der Zwischenzeit ein wenig nach links-unten bewegt. Auch wenn es aus den bereits diskutierten Gründen schwierig ist, zu diesem Zeitpunkt eine genaue Goldbedeckung anzugeben, kann davon ausgegangen werden, dass diese entsprechend Abschnitt 4.2 bei etwa 0,3 Monolagen liegt. Der gezeigte Zeitpunkt befindet sich nämlich in etwa bei Beginn des Intensitätseinbruchs, aber noch deutlich vor dem Kontrastverlust. Mit der Deposition wurde etwa 60 Sekunden zuvor und mit einer sehr geringen Depositionsrate begonnen. Dennoch ist eine Auswirkung der Adsorption deutlich zu erkennen. Beide Stufentypen verlaufen im Vergleich zu der Situation ohne Gold auf der Oberfläche viel kurviger. Zwar hat sich die Orientierung der Stufen insgesamt nicht verändert, aber die lokale Krümmung ist dramatisch angestiegen. Zudem zeigt die Veränderung der Stufenform innerhalb von nur vier Sekunden ((b) - (c)) deutlich eine Bewegung der Stufen auf einer Zeitskala, auf der sich diese Stufen ohne Goldbedeckung noch nahezu statisch verhalten haben. Weitere Bilder dieses Experimentes zeigen förmlich ein Mäandern der Stufen über die Oberfläche, wie es auf einer sauberen Si-Oberfläche sonst nur bei deutlich höheren Temperaturen

zu beobachten ist. Abbildung 4.8 erinnert daher stark an Abbildung 1 aus [51]. Es kann folglich zusammengefasst werden, dass die Adsorption von Gold bei konstanter Temperatur zu einer deutlichen Erhöhung der Stufenfluktuationen führt. Diese Beobachtung ist ebenfalls konsistent mit der in Abschnitt 4.3.3 diskutierten Auswirkung von Gold auf die Oberfläche und der Erklärung mit Hilfe des Oberflächeneutektikums und einer damit reduzierten Aufräumungstemperatur.

Solche Stufenfluktuationen auf einer reinen Si(001)-Oberfläche sind, mit Hilfe von LEEM-, SPA-LEED- (Spotprofil-Analyse-LEED) und STM-Untersuchungen, in der Vergangenheit bereits quantitativ durchgeführt [51, 46, 117, 118] sowie theoretisch berechnet worden [119, 120, 41] (siehe hierzu auch Abschnitt 1.2.3). Eine solche quantitative Auswertung der hier gezeigten, goldinduzierten Stufenfluktuationen ist allerdings aus zwei Gründen faktisch nicht möglich. Zum einen ist dieser Effekt nur bei sehr geringen Goldbedeckungen zu beobachten. Bei höheren Bedeckungen tritt nahtlos der im nächsten Abschnitt diskutierte Effekt wechselnder Terrassendominanzen ein. Daher ist es notwendig die Depositionsrate gerade so einzustellen, dass eine Bedeckung in diesem Bereich der erhöhten Stufenfluktuation für längere Zeit konstant erreicht wird. In der Praxis hat sich das als nicht realisierbar gezeigt. Zum anderen führt die im nächsten Abschnitt erläuterte Beobachtung auch zu einer bedeckungsabhängigen Verschiebung der Stufenkanten. Somit kann auch eine quantitative Auswertung der Fluktuation mit Hilfe einer periodischen Variation der Terrassenbreite und nachfolgender Fourieranalyse wie in [46] praktisch nicht herangezogen werden. Die hier diskutierten Ergebnisse können daher nur den qualitativen Einfluss von Gold auf die Stufenfluktuationen und keine Bedeckungsabhängigkeit zeigen. Eine solche ist ohnehin nur bei Kenntnis der genauen Goldbedeckung auf der Oberfläche aussagekräftig, was in Abschnitt 4.5 noch detailliert diskutiert werden wird. Der Fokus soll in diesem Teil des Kapitels vielmehr auf die nachfolgend erläuterten Beobachtungen gelegt werden.

4.4.2 Dominanz einzelner Terrassentypen

Deutlich stärker als der Effekt einer erhöhten Stufenfluktuation ist eine weitere Beobachtung, die insbesondere bei höheren Gold-Bedeckungen bis hin zum Punkt des Kontrastverlustes gemacht wurde. So ist bereits bei den Auswertungen des beschleunigten Hügelzerfalls aufgefallen, dass sich in der Nähe eines Hügels unterschiedliche Dominanzen der beiden verschiedenen Domänen ausbilden. Trotz fluktuierender Stufen ist (zumindest im thermodynamischen Gleichgewicht) eigentlich davon auszugehen, dass sich aufgrund der Maximierung der Stufenentropie entsprechend Abschnitt 1.2.1.2 äquidistante Stufenabstände und damit gleichgroße Terrassenbreiten einstellen. Ein genau solches Verhalten wird im Rahmen der Gold-Adsorption auf der Oberfläche aber gerade nicht beobachtet.

In Abbildung 4.9 sind drei LEEM-Bilder solch einer Hügelumgebung bei unterschiedlichen Goldbedeckungen und einer konstanten Temperatur von etwa 875°C zu sehen. Bild (a) zeigt die Situation ohne Gold auf der Oberfläche. Anhand der Hauptachsen der elliptischen Terrasse auf dem Hügel ist es nun möglich die Orientierung der Dimerreihen für die weißen Terrassen zu bestimmen. Diese liegen gerade parallel zur großen Hauptachse der Ellipse und die Dimere sind folglich senkrecht dazu orientiert. In der Abbildung sind diese beiden Richtungen ebenfalls eingezeichnet (rote Pfeile). Dimere und Dimerreihen der schwarzen Terrassen sind in ihrer Orientierung dementsprechend um 90° dazu gedreht.

Wird nun Gold auf der Oberfläche deponiert, so ist insbesondere der linke Bereich des Bildes unterhalb des Sattels interessant. In diesem Bereich machen die Stufen einen Bogen von etwas über 90° und wechseln daher von S_A - zu S_B -Stufen oder umgekehrt. Die Dimerreihen auf der Oberfläche weisen also relativ zur Stufe in einem sehr kleinen Bereich beide Orientierungen auf. Zu Beginn der Deposition (Abbildung 4.9 (a)) sind die Flächenverhältnisse von weißen zu schwarzen Terrassen in diesem Bereich nahezu gleich verteilt. Bild (b) zeigt die Situation nach der Deposition von Gold auf der Oberfläche. Es ist deutlich zu erkennen, dass sich ein Bereich weißer (A) und ein Bereich schwarzer Terrassendominanz (B) ausgebildet hat. In dem Bereich A, in dem die Stufen in etwa horizontal im Bild liegen, dominieren die weißen Terrassen. Dort liegen auch die Dimerreihen in etwa parallel zu den Stufen. In einer dominierenden weißen Terrasse sind diese Dimerreihen in rot skizziert, sodass die genaue Orientierung deutlich wird. In dem Bereich B, in dem die Stufen in etwa vertikal im Bild verlaufen, dominiert

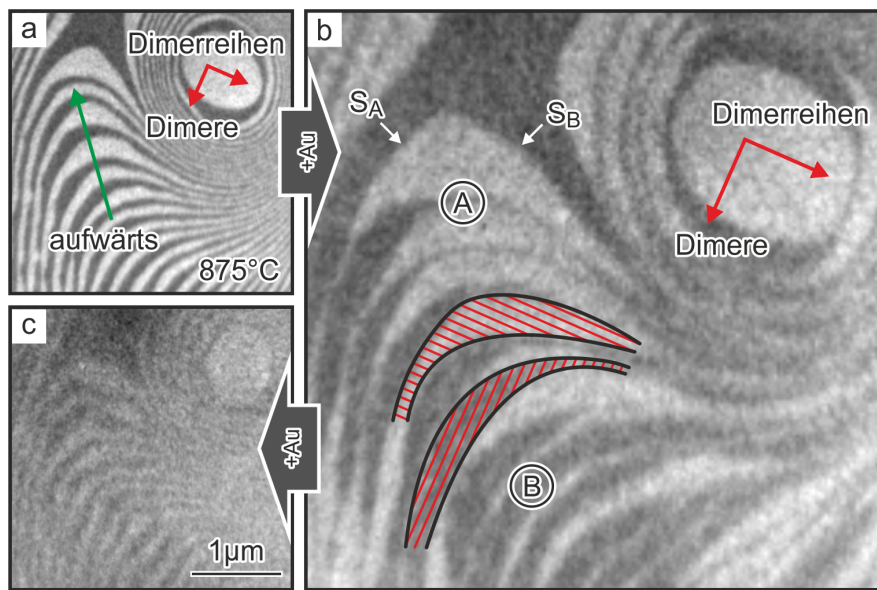


Abbildung 4.9: Umgebung eines Hügels unter dem Einfluss der Goldadsorption. Durch die elliptische Form der obersten Terrasse kann die Richtung der Dimere und Dimerreihen für diesen weißen Terrassentyp bestimmt werden (rote Pfeile). Für den schwarzen Terrassentyp ist die Orientierung entsprechend um 90° gedreht. (a) Hügelumgebung ohne Gold auf der Oberfläche. Weiße und schwarze Terrassen sind flächenmäßig etwa gleich verteilt. (b) Gold auf der Oberfläche führt zu zwei verschiedenen Bereichen unterschiedlicher Terrassendominanz (A und B). Auf zwei Terrassen ist dabei exemplarisch die Lage der Dimerreihen in rot skizziert. Diese liegen bei den dominierenden Terrassen immer etwa parallel zu den Stufen. Die beiden verschiedenen Bereiche entstehen weil die Stufen zwischen A und B einen 90° Bogen beschreiben. (c) Weitere Au-Deposition führt zu einem Aufrauungsphasenübergang. Kurz zuvor haben die unterdrückten Terrassen wieder an Fläche gewonnen und beide Typen sind flächenmäßig wieder gleich verteilt.

hingegen der schwarze Terrassentyp (wenn auch nicht so deutlich), bei dem die Dimerreihen ebenfalls in diese Richtung orientiert sind. Auch hier sind auf einer schwarzen Terrasse exemplarisch wieder die Dimerreihen skizziert.

Weiteres Gold auf der Oberfläche führt schließlich zu dem diskutierten Aufrauungsphasenübergang. Bild (c) zeigt die Situation kurz vor diesem Punkt. Hier ist eindeutig zu erkennen, dass die jeweils unterdrückten Terrassen wieder deutlich an Fläche gewonnen haben und beide Terrassentypen in dem gesamten Bereich A,B in etwa wieder gleich verteilt sind.

Um die beobachteten Ergebnisse besser im Detail untersuchen zu können, ist eine gleichmäßig gestufte Oberfläche ohne Hügel in der Umgebung gewählt worden. Auf diese Weise sind Dimere und Dimerreihen der beiden Terrassentypen in

Bezug auf die Stufe überall in etwa gleich orientiert. Abbildung 4.10 zeigt eine Bilderserie einer solchen gleichmäßig gestuften Si(001)-Oberfläche im Dunkelfeld-LEEM unter dem Einfluss der Deposition von Gold. Das Experiment wurde bei einer Temperatur von etwa 890°C durchgeführt und das Gesichtsfeld eines einzelnen Bildes in der Abbildung beträgt 5 μm . Der Dynamikumfang der gesamten Bilderserie war dabei so groß, dass der Kontrast für jedes einzelne Bild angepasst werden musste. Bild (a) zeigt die saubere Si(001)-Ausgangsfläche, bei der die schwarzen und weißen Terrassen etwa ähnlich breit sind. Anschließend wurde mit der Deposition von Gold auf der Oberfläche begonnen. Die Bilder (b) und (c) zeigen die Oberfläche 100 s bzw. 140 s nach Beginn der Deposition. Es ist deutlich zu erkennen, dass die schwarzen Terrassen infolge der Gold-Adsorption wachsen und die weißen Terrassen schrumpfen. Im Bild (c) hat diese Dominanz ihren Höhepunkt erreicht. Von den weißen Terrassen ist so gut wie nichts mehr zu erkennen, sodass an diesen Stellen die Stufen fast schon zu Doppelstufen zusammengeschoben wurden. Erstaunlicherweise ändert weitere Deposition von Gold diese Situation wieder und nur 40 s später ist in Bild (d) kurz vor dem vollständigen Verlust des Kontrastes eine Dominanz der weißen Terrassen zu beobachten. Hier sind zudem gut die bereits recht rauen Stufen und Terrassen zu erkennen, welche ein Indiz für den Beginn des Aufrauungsphasenübergangs sind. Daher ist einige Sekunden später in Bild (e) der Kontrast auch vollständig verloren gegangen und eine weitere Beobachtung ist nicht mehr möglich. Um dem entgegen zu wirken wurde zu diesem Zeitpunkt die Gold-Depositionsrate soweit reduziert, dass in Folge dessen mehr Gold von der Oberfläche desorbiert als adsorbiert wird und so die Gold-Oberflächenbedeckung im weiteren Verlauf langsam sinkt. Abbildung 4.10 (f) zeigt die Situation direkt nachdem der Kontrast wieder vorhanden ist, also zum Zeitpunkt maximaler Gold-Bedeckung auf der Oberfläche, die noch im LEEM zu beobachten ist. Auch hier findet sich deutlich die schon in (d) beobachtete Dominanz des hier weißen Terrassentyps. Diese Dominanz kehrt sich jedoch auch hier wieder in Folge weiterer Desorption von Gold von der Oberfläche zu Gunsten des schwarzen Terrassentyps um. Bild (g) zeigt dabei den Übergangsbereich und (h) bereits die deutliche Dominanz der schwarzen Terrassen, wenngleich auch nicht ganz so stark wie in (c). Um die Oberfläche anschließend wieder ganz vom Gold zu befreien, ist es bei diesen Temperaturen ausreichend, die Deposition zu beenden. Das Gold desorbiert vollständig von der Oberfläche und bereits kurze Zeit später entspricht die in (i) gezeigte Situation der Ausgangsfläche aus (a). Die weißen Terrassen sind wieder gewachsen, die schwarzen geschrumpft und

insgesamt sind beide Terrassentypen wieder ähnlich breit bzw. haben dasselbe Verhältnis wie in Bild (a).

An dieser Stelle sei noch einmal darauf hingewiesen, dass die Terrassen im Laufe des gezeigten Experiments wirklich ihre Größe ändern, die Stufen sich also verschieben, und nicht etwa die Domänen infolge der Gold-Adsorption ihre Rekonstruktion und damit ihre Helligkeit ändern.

Durch die Orientierung der elliptischen Terrassenformen eines Hügels in der Nähe des untersuchten Bereichs und unter der Voraussetzung gleicher Abbildungsbedingungen, kann nach Abbildung 4.9 auch hier eine Aussage über die Lage der Dimere und Dimerreihen getroffen werden. Für den Fall der in Abbildung 4.10 gezeigten Bilderserie liegen die Dimerreihen der schwarzen Terrassen immer gerade parallel und die der weißen Terrassen immer senkrecht zu den Stufenkanten. Als Folge dessen kann festgehalten werden, dass mit steigender Goldbedeckung zunächst der Terrassentyp dominiert, bei dem die Dimerreihen parallel zu den Stufen verlaufen (Abbildung 4.10 (c)). Dies ist konsistent mit den oben diskutierten Beobachtungen in der Umgebung eines Hügels. Weitere Goldadsorption ändert die Situation hin zu einer Dominanz des anderen Terrassentyps, bei dem die Dimerreihen gerade senkrecht zu den Stufenkanten liegen (d). Bei einer daraufhin sinkenden Goldbedeckung auf der Oberfläche werden diese beiden Dominanzbereiche wieder umgekehrt durchlaufen ((f) bis (i)). Im unteren linken Teil der Bilder sind kleine Skizzen der Dominanzverhältnisse der Terrassen mit den jeweiligen Rekonstruktionen gezeigt. In diesen sind die Dimerreihen rot und die unterschiedlichen Terrassentypen weiß bzw. grau dargestellt. Im Verlauf des gezeigten Experiments kann mithilfe dieser Skizzen gut die Änderung der flächenmäßigen Verteilung der beiden Rekonstruktionen verdeutlicht werden.

Insgesamt scheint diese Terrassendominanz dem ersten Schritt in Richtung einer Facettierung zu entsprechen. Stufen werden zusammen geschoben und es entstehen Doppelstufen bzw. bei Proben mit einer deutlich größeren Fehlneigung wahrscheinlich auch Stufenbündel. Bei letzteren wird dies bei noch weiterer Deposition von Gold schließlich zur Ausbildung von Facetten führen, die bei den hier untersuchten Fehlneigungen allerdings nicht auftreten werden. Auch die dazu nötigen, höheren Gold-Bedeckungen sollen hier nicht Gegenstand der Untersuchung sein. Vielmehr gilt es den in der Bilderserie beobachteten Effekt der wechselnden Dominanzen noch detaillierter zu untersuchen. Dazu ist es hilfreich die Größe der beiden verschiedenen Terrassentypen als Funktion der Zeit bzw. der Bede-

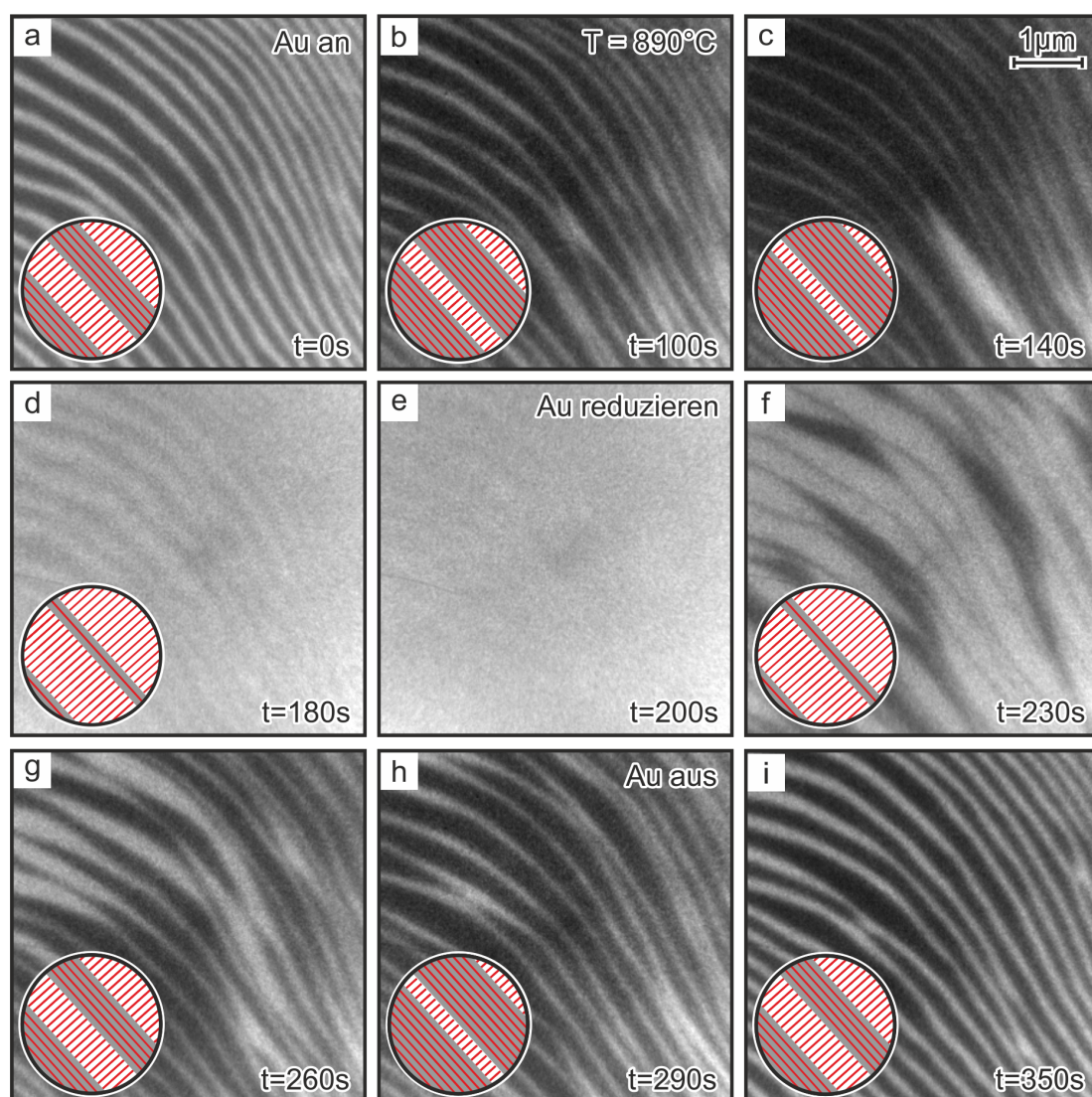


Abbildung 4.10: Bilderserie einer gleichmäßig gestuften Si(001)-Oberfläche unter dem Einfluss der Gold-Deposition bei einer Temperatur von etwa 890°C. Unter den verwendeten Abbildungsbedingungen liegen die Dimerreihen der schwarzen Terrassen immer gerade parallel und die der weißen Terrassen immer senkrecht zu den Stufenkanten. (a) Ausgangsfläche bei der weiße und schwarze Terrassen ähnlich breit sind. (b) - (c) Deposition von Gold führt zunächst zu einer deutlichen Dominanz der hier schwarzen Terrassen. (d) Weitere Deposition kehrt die Dominanz zu Gunsten des weißen Terrassentyps um. (e) Durch die Reduktion der Aufrauungstemperatur geht der Kontrast im Dunkelfeld vollständig verloren. Die Depositionsrate wird verringert und in Folge dessen desorbiert mehr Gold als adsorbiert wird. (f) Wenn der Kontrast wiederkehrt ist wieder die Dominanz der weißen Terrassen zu beobachten. (g) - (h) Durch die Reduktion der Gold-Bedeckung gewinnt wieder der schwarze Terrassentyp an Dominanz. (i) Nachdem die Deposition beendet wurde desorbiert das Gold vollständig von der Oberfläche und es stellt sich wieder die Ausgangssituation aus (a) ein. In den gezeigten Bildern sind zudem kleine Skizzen der Dominanzverhältnisse der Terrassentypen und der jeweiligen Rekonstruktionen gezeigt. Die Dimerreihen sind dabei in diesen Skizzen rot dargestellt.

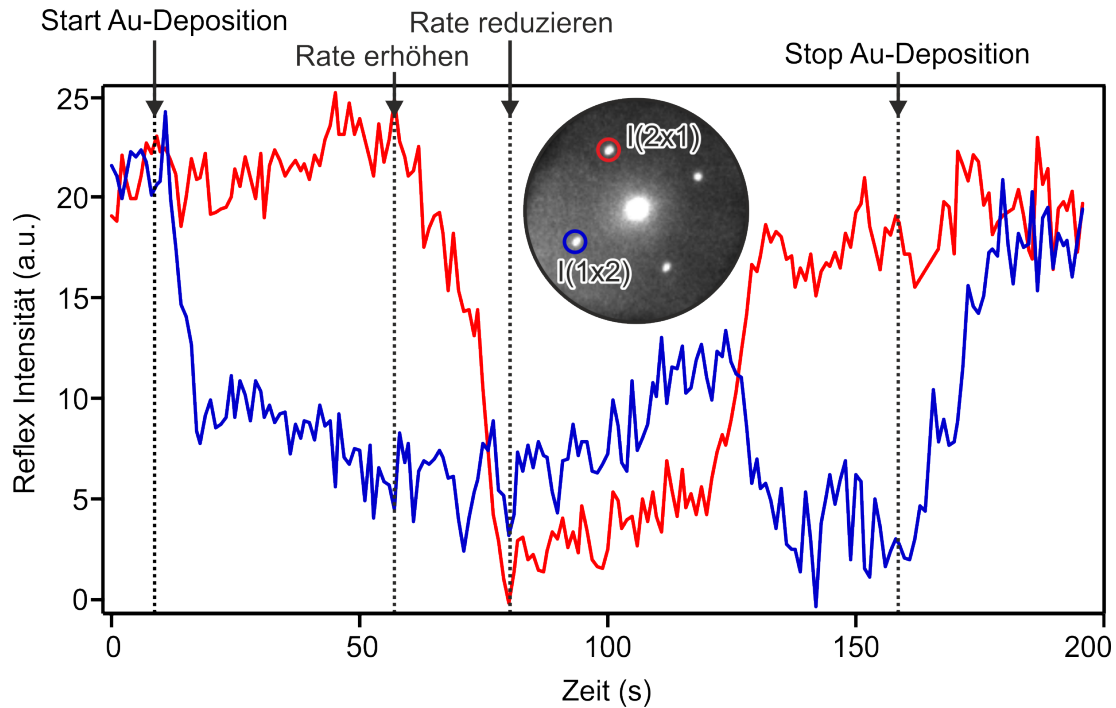


Abbildung 4.11: Intensität der LEED-Reflexe (blau: (1×2) -Spot, rot: (2×1) -Spot) als Funktion der Zeit und unter dem Einfluss der Adsorption von Gold bei einer Temperatur von 890°C . Die Spotintensitäten entsprechen dabei gerade den Terrasengrößen im Realraum. Adsorption von Gold führt zunächst zu einem Einbruch der blauen Kurve und damit zu einer Dominanz der (2×1) -Domänen. Bei höheren Bedeckungen wechselt diese Dominanz zu Gunsten der (1×2) -Domänen. Reduktion bzw. Beenden der Deposition führt zu einem umgekehrten Durchlaufen der beiden Dominanzbereiche und endet schließlich wieder bei der Ausgangssituation mit gleich hohen Intensitäten.

ckung aufzutragen. Eine Extrahierung der Flächen aus den LEEM-Bildern ist dazu allerdings überflüssig, denn genau diese Informationen stecken bereits in den entsprechenden LEED-Bildern. Die Fläche der weißen Terrassen im LEEM-Bild entspricht ja gerade der Intensität des zur Abbildung genutzten LEED-Spots und ebenso entspricht die Fläche der schwarzen Terrassen gerade der Intensität des anderen, nicht zur Abbildung genutzten, LEED-Spots. Daher wurde ein ähnlich dem in Abbildung 4.10 gezeigtes Experiment auf derselben Probe wiederholt und dabei LEED-Bilder der Oberfläche aufgenommen, die im Folgenden ausgewertet werden.

Abbildung 4.11 zeigt den Verlauf der Intensitäten der beiden unterschiedlichen LEED-Reflexe als Funktion der Zeit und für eine Temperatur von ebenfalls etwa 890°C . Der Inset zeigt dabei ein entsprechendes LEED-Bild, aus dem klar wird,

um welche Intensitäten es sich handelt. In rot ist die Intensität des (2×1) -Spots und in blau die des (1×2) -Spots aufgetragen. Dabei ist jeweils der Hintergrund der diffusen Intensität des LEED-Bildes abgezogen worden. Zu Beginn sind die Intensitäten der beiden Spots in etwa gleich hoch, die Terrassengrößen beider Domänen also gleich groß. Doch direkt nach Beginn der Deposition ist ein starker Einbruch der Intensität des (1×2) -Spots (blaue Kurve) zu beobachten. Der (2×1) -Spots hingegen (rote Kurve) verliert nicht an Intensität, sodass in diesem Regime der dazu korrespondierende Terrassentyp deutlich dominiert. Im Realraum entspricht diese Situation gerade dem Bild (c) aus Abbildung 4.10. Erst eine Erhöhung der Depositionsrate und dadurch mehr Gold auf der Oberfläche lässt auch die Intensität des (2×1) -Spots deutlich einbrechen. Genauer betrachtet fällt die Intensität sogar unterhalb der des (1×2) -Spots, was im Realraum (Abbildung 4.10 (d)) einer Umkehr der Dominanz zugunsten des Terrassentyps der (1×2) -Domäne entspricht. Eine Reduzierung der Depositionsrate zu diesem Zeitpunkt wendet zwar den völligen Intensitätsverlust beider Spots ab, ändert allerdings nichts an den Verteilungsverhältnissen der beiden Domänen. Zwar steigen die Intensitäten beider Spots wieder an, aber die blaue Kurve liegt noch immer deutlich über der roten Kurve. Eine weitere Reduktion der Goldbedeckung führt dann allerdings doch wieder zu einem Wechsel der Dominanzen zu Gunsten der (2×1) -Domänen (hier etwa um Sekunde 125). Dabei fällt auf, dass nicht nur die Intensität des (2×1) -Spots plötzlich zunimmt, sondern auch, dass die des (1×2) -Spots schlagartig abnimmt, sodass die Gesamtintensität konstant bleibt. Im Realraum in Abbildung 4.10 entspricht diese Situation gerade dem Übergang von (f) nach (h). Das Beenden der Deposition führt schließlich zur vollständigen Desorption des Goldes von der Oberfläche, sodass sich auch die Intensitäten der beiden Spots und damit die Terrassengrößen beider Domänen wieder angleichen.

Noch deutlicher wird diese Situation, wenn nicht die Intensitäten $I(2 \times 1)$ und $I(1 \times 2)$ der beiden Reflexe, sondern die sich daraus ergebende Asymmetrie

$$A = \frac{I(2 \times 1) - I(1 \times 2)}{I(2 \times 1) + I(1 \times 2)} \quad (4.1)$$

als Funktion der Zeit aufgetragen wird. Eine solche noch kompaktere Darstellung ist in Abbildung 4.12 gezeigt. Wie im rechten Teil der Abbildung skizziert, bedeutet eine positive Asymmetrie, dass der Terrassentyp flächenmäßig dominant

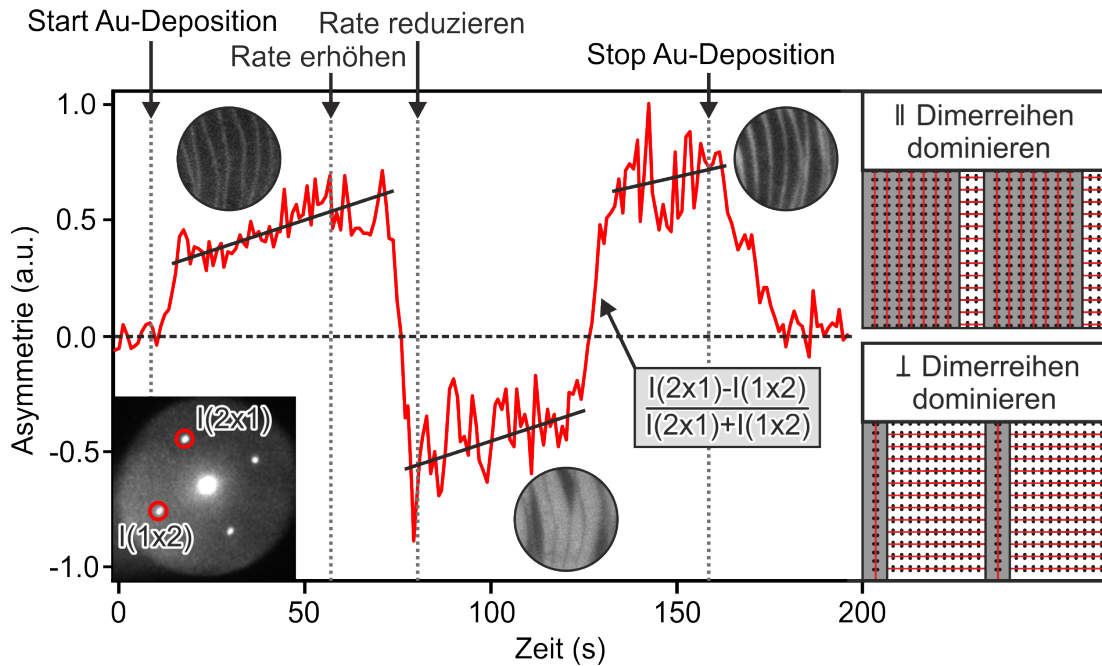


Abbildung 4.12: Asymmetrie $\frac{I(2 \times 1) - I(1 \times 2)}{I(2 \times 1) + I(1 \times 2)}$ der beiden Reflexintensitäten $I(2 \times 1)$ und $I(1 \times 2)$ aus Abbildung 4.11 als Funktion der Zeit und unter dem Einfluss der Adsorption von Gold. Eine positive Asymmetrie bedeutet zu den Stufen parallele Dimerreihen und eine negative Asymmetrie bedeutet zu den Stufen senkrechte Dimerreihen (Skizzen rechts). Deutlich sind die drei unterschiedlichen Dominanzbereiche zu erkennen, zu denen zusätzlich immer das jeweils korrespondierende LEEM-Bild aus Abbildung 4.10 gezeigt ist.

ist, bei dem die Dimerreihen (rot) parallel zu den Stufenkanten (schwarz) orientiert sind. Eine negative Asymmetrie deutet hingegen auf eine Dominanz des Terrassentyps hin, bei dem die Dimerreihen gerade senkrecht auf den Stufenkanten stehen. Ebenfalls sind in diesen beiden Rekonstruktionsskizzen die Dimere senkrecht zu den Dimerreihen als schwarze Punkte angedeutet. Im Gegensatz zur Auftragung in Abbildung 4.11 sind hier direkt die drei unterschiedlichen Dominanzbereiche deutlich zu erkennen. Zunächst führt die Adsorption von Gold zu einer positiven Asymmetrie. Weiteres Gold auf der Oberfläche führt dann allerdings zu einem abrupten Übergang in den negativen Bereich, ändert also die Dominanzverhältnisse. Die Reduktion der Depositionsrate ändert die Situation auf der Oberfläche. Die Goldbedeckung sinkt und in Folge dessen springt die Asymmetrie wieder in den positiven Bereich. Ein Beenden der Deposition lässt die beiden Terrassentypen schließlich wieder gleichgroß werden. Die Asymmetrie verschwindet zu Null. Bei allen drei Dominanzbereichen ist zusätzlich das jeweils korrespondierende LEEM-Bild aus Abbildung 4.10 gezeigt.

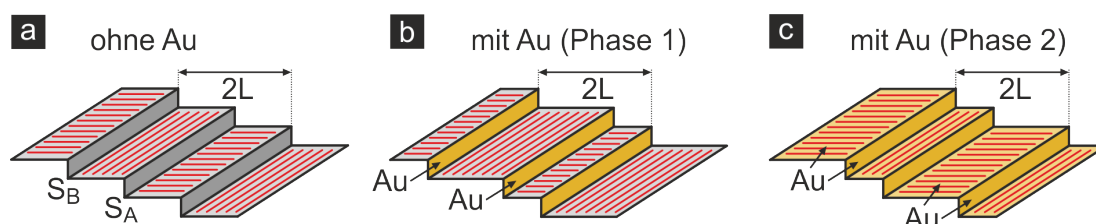


Abbildung 4.13: Modellvorstellung der goldinduzierten Terrassendominanzen. (a) Gleichmäßig gestufte Oberfläche mit Stufenabstand L ohne Gold. Die Dimerreihen sind in rot dargestellt. (b) Phase der ersten Terrassendominanz. Gold lagert sich zunächst nur an den Stufenkanten an und führt zu einer deutlichen Vergrößerung der Terrassen mit Dimerreihen parallel zu den Stufen. (c) Phase der zweiten Terrassendominanz. Gold lagert sich nun auch auf den Terrassen an und führt zu einer Dominanz des Terrassentyps mit Dimerreihen senkrecht zu den Stufen. Sowohl in (b), als auch in (c) bleibt die Gesamtbreite zweier benachbarter Terrassen unverändert $2L$.

Nachdem der beobachtete Effekt detailliert analysiert wurde, soll im Folgenden dafür ein Erklärungsansatz gefunden und diskutiert werden. Wie bereits für die Bildung des Eutektikums erörtert wurde, ist davon auszugehen, dass die Goldatome bei diesen Temperaturen so mobil sind, dass sie quasifrei über die Terrassen diffundieren können und sich zunächst an den Stufenkanten anlagern, weil dort mehr freie Bindungen zur Verfügung stehen. Erst wenn diese Adsorptionsplätze besetzt sind, lagert sich weiteres Gold auf den Terrassen an und geht dort Silizid-Bindungen mit den Dangling Bonds der Si-Oberflächenatome ein. Erst deutlich höhere Goldbedeckungen führen schließlich zur erwähnten $(5 \times 3, 2)$ -Oberflächenrekonstruktion bzw. bei höheren Temperaturen zur Aufrauung der Oberfläche. Die beiden Dominanzeffekte treten allerdings bereits vor der kritischen Bedeckung des Aufrauungsphasenübergangs auf, sodass es auf der Hand liegt, die beiden Dominanzen mit den beiden unterschiedlichen Anlagerungsmechanismen in Verbindung zu bringen.

Abbildung 4.13 zeigt eine Skizze der Modellvorstellung dieser goldinduzierten Terrassendominanzen. In (a) ist die Situation ohne Gold auf der Oberfläche skizziert. In rot ist dabei wieder die Orientierung der Dimerreihen eingezeichnet. Die Oberfläche ist gleichmäßig gestuft und die Terrassen haben alle eine Breite L . Skizze (b) zeigt die Phase der ersten Terrassendominanz infolge der Deposition von Gold. Dieses lagert sich zunächst nur an den Stufenkanten an und führt zu einer Vergrößerung der Terrassen, deren Dimerreihen parallel zu den Stufen liegen. Die Gesamtbreite zweier Terrassen ist dabei unverändert $2L$. Weiteres Gold

lagert sich schließlich auch auf den Terrassen an, wie in Bild (c) durch die Einfärbung schematisch dargestellt ist. Die zuvor dominierenden Terrassen schrumpfen dadurch deutlich und es bildet sich eine Dominanz des Terrassentyps aus, auf dem die Dimerreihen senkrecht zu den Stufen stehen (Phase 2). Auch hierbei ist die Gesamtbreite zweier Terrassen wieder unverändert. Ein zu dieser Modellvorstellung passender Erklärungsansatz soll im Folgenden diskutiert werden.

Bei dem ersten Mechanismus der Stufendekoration ist davon auszugehen, dass für eine Erklärung des Effekts mit einer Manipulation der Verspannung argumentiert werden muss, da Energieänderungen an der Stufe nicht zu einer linearen Verschiebung ganzer Stufen führen. Wie in Abschnitt 1.1.3 erläutert, erzeugen Domänengrenzen, wie beispielsweise Stufen, Verspannungsdipole, die unter anderem zu einer Stufen-Stufen-Wechselwirkung führen. Diese ist nach dem Marchenko-Parshin-Modell sowie entsprechend experimenteller Befunde proportional zum inversen Quadrat des Stufenabstandes L . Im hier diskutierten Fall der Stufendekoration ist nun davon auszugehen, dass die Anlagerung von Gold an den zwei unterschiedlichen Stufentypen die Verspannungsdipole so manipuliert, dass sich zum einen die Stufen-Stufen-Wechselwirkung dramatisch verändert und zum anderen auch äquidistante Stufenabstände nicht mehr das energetische Minimum des in Abschnitt 1.1.3 diskutierten Gesamtverspannungsfeldes darstellen. Als Folge dessen verschieben sich die Stufen in der Weise, dass ein Terrassentyp über den anderen dominiert. Dieser Erklärungsansatz für den ersten Dominanzbereich wird fundiert durch theoretische Arbeiten, in denen gezeigt werden konnte, dass selbst die intrinsischen Unterschiede der Verspannungsdipole der verschiedenen Stufentypen zu einer leichten Bevorzugung eines Terrassentyps führt [121, 122].

Zusätzlich haben Experimente im Rahmen dieser Arbeit verifizieren können, dass der Effekt bei sehr großen Stufenabständen ($> 1 \mu\text{m}$) nicht mehr so stark beobachtet werden kann. Bisher wurden nur Experimente analysiert bei denen die Stufen wie in Abbildung 4.10 etwa 100 nm bis 200 nm auseinander lagen. Abbildung 4.14 zeigt exemplarisch LEEM-Bilder eines solchen Experimentes bei einer Temperatur von etwa 850°C. In Bild (a) ist die Si-Oberfläche ohne Gold zu sehen. Dabei befinden sich im rechten Teil des Bildes die Stufen mit einem typischen Stufenabstand von etwa 100 nm bis 200 nm im direkten Vergleich zum linken Bildteil deutlich näher beieinander. Dort haben die Stufen einen Abstand von teilweise über 2 μm . Die Dimerreihen der weißen Terrassen (rot eingezeichnet) verlaufen im gewählten Bildausschnitt horizontal und damit in etwa senkrecht

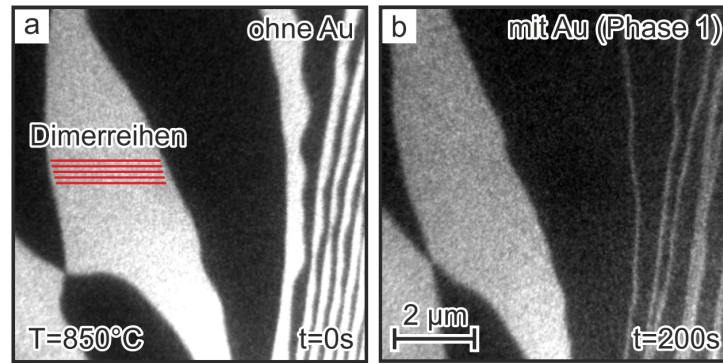


Abbildung 4.14: Einfluss des Stufenabstandes auf die goldinduzierte Terrassendominanz. (a) LEEM-Bild einer Si-Oberfläche bei etwa 850°C mit typischen Stufenabständen im rechten Bildteil (etwa 100 nm bis 200 nm) und deutlich größeren Stufenabständen im linken Bildteil (bis zu 2 µm). Die Dimerreihen verlaufen auf den weißen Terrassen in etwa senkrecht (rot eingezeichnet) und auf den schwarzen Terrassen in etwa parallel zu den Stufen. (b) Situation mit Gold auf der Oberfläche im Bereich der ersten Terrassendominanz (Phase 1). Im rechten Bildteil ist der Effekt der ersten Terrassendominanz ausgeprägt zu erkennen. Bei deutlich größeren Stufenabständen (linker Bildteil) scheint die Adsorption von Gold keinen Einfluss auf die Stufenkinetik zu haben. Dieses Ergebnis steht im Einklang mit der diskutierten $\frac{1}{L^2}$ -Abhängigkeit der Stufen-Stufen-Wechselwirkung

zu den Stufenkanten im Bild. Auf den schwarzen Terrassen verlaufen die Dimerreihen folglich in etwa parallel zu den Stufen. Bild (b) zeigt die Situation mit Gold auf der Oberfläche im Bereich der ersten Terrassendominanz (Phase 1). Wie zu erwarten dominiert im rechten Teil des Bildes der Terrassentyp mit zu den Stufen parallelen Dimerreihen (hier schwarz). Im linken Teil des Bildes, wo die Stufenabstände deutlich größer sind, wurden die weißen Terrassen allerdings nicht zusammengeschoben, sondern existieren noch immer in etwa gleicher Größe. Folglich ist davon auszugehen, dass dieser Effekt für wachsende Stufenabstände abnimmt. Dieses Ergebnis steht ebenfalls nicht im Widerspruch zu der vorhergesagten $1/L^2$ -Abhängigkeit der Stufen-Stufen-Wechselwirkung und passt daher gut zur erläuterten Modellvorstellung.

Weitere Adsorption von Gold führt schließlich auch zur Terrassendekoration und damit zur Ausbildung von Silizid-Bindungen mit den Dangling Bonds. Als Folge dessen wird sich auch der in Abschnitt 1.1.3 eingeführte anisotrope Verspannungstensor der Domänen ändern. Damit ist auch der zweite Dominanzbereich kurz vor dem Aufrauungsphasenübergang zu erklären. Mit einer Veränderung der Zug- und Druckspannungen, geht ebenfalls eine Verschiebung des in Abschnitt 1.1.3 diskutierten Energieminimums des langreichweitigen Gesamtverspannungs-

feldes einher. Dieses Minimum der Energie verschiebt sich in der Weise, dass sich in Folge dessen der zuvor noch unterdrückte Terrassentyp deutlich vergrößert und schließlich die Oberfläche dominiert.

4.4.3 Einfluss extrinsischer Verspannungen

Abschließend ist versucht worden, die diskutierten Ergebnisse der gezeigten Experimente durch die Bestimmung der Orientierungen von Dimeren und Dimerreihen auf mehreren unterschiedlichen Proben zu verifizieren. Dabei konnte für nahezu unverspannte Proben mit steigender Goldbedeckung immer eine anfängliche Dominanz der Terrassen mit zu den Stufen parallelen Dimerreihen, gefolgt von einer Dominanz der Terrassen mit zu den Stufen senkrechten Dimerreihen beobachtet werden. Allerdings ist ebenfalls aufgefallen, dass diese Systematik nicht mehr für bereits extrinsisch verspannte Proben gilt. Dieser Einfluss soll im Folgenden näher untersucht werden.

Wie bereits in Abschnitt 1.1.3 erläutert wurde, hat eine extrinsische Verspannung der Probe schon für saubere Si(001)-Oberflächen dramatische Auswirkungen auf das Flächenverhältnis der (2×1) - und (1×2) -Domänen. Als Erklärung dafür konnte eine Minimierung der Energie des langreichweitigen Gesamtverspannungsfeldes ausgemacht werden. Der so erklärte Einfluss einer extrinsischen Verspannung auf die Terrassendominanz bekräftigt zum einen den im letzten Abschnitt diskutierten Erklärungsansatz, der ebenfalls auf Grundlage der Verspannungsdipole der Stufen und des Verspannungstensors der Terrassen geführt wurde. Zum anderen zeigt er aber auch den Grad der Verspannung der zur Untersuchung der Terrassendominanz bisher herangezogenen Proben. Vor dem Beginn der Golddeposition waren schwarze und weiße Terrassentypen flächenmäßig jeweils immer etwa gleich verteilt, was entsprechend der eben diskutierten Ergebnisse auf eine (zumindest lokal) unverspannte Oberfläche hindeutet.

Bei der Vielzahl der untersuchten Proben gab es jedoch auch solche, welche extrinsisch nicht unverspannt schienen. Gründe für eine solche Verspannung könnten wie ausführlich in Abschnitt 3.4.4 diskutiert z.B. eine ungleichmäßige Befestigung der Probe oder eine thermische Verspannung durch den Probenhalter bei den hohen Temperaturen sein. Abbildung 4.15 (a) zeigt ein LEEM-Bild solch einer verspannten Probe bei einer Temperatur von etwa 850°C. Auf der Probe sind

sowohl Bereiche zu finden, in denen der weiße Terrassentyp dominiert (in Bild (a) oben), als auch Bereiche in denen die Situation invertiert ist und der schwarze Terrassentyp dominiert (in Bild (a) unten). Die Stufen verlaufen dabei allerdings im Wesentlichen immer in dieselbe Richtung. Daher ist davon auszugehen, dass in dem gezeigten Bild zwei Bereiche unterschiedlicher Verspannungsrichtungen koexistieren. Diese Vermutung wird zusätzlich von der Beobachtung eines genau durch die Grenze der beiden Bereiche durchlaufenden Durchstoßpunktes einer Versetzungslinie unterstützt, welche während der Vorbereitungen zu diesem Experiment gemacht wurde. In (a) ist zusätzlich die Lage der Dimerreihen für beide Terrassentypen eingezeichnet, die hier durch die Kenntnis des zur Abbildung genutzten LEED-Reflexes in Kombination mit der Bilddrehung zwischen LEED- und LEEM-Modus des Mikroskops bestimmt wurde. Die Dimerreihen verlaufen in dem gezeigten Ausschnitt für die weißen Terrassen immer etwa parallel zu den Stufenkanten, sodass zu erwarten wäre, dass die Deposition von Gold zunächst diesen (weißen) Terrassentyp wachsen lassen müsste. Bild (b) zeigt die Situation mit Gold auf der Oberfläche und einer Bedeckung im Bereich der ersten Dominanz. Im oberen Teil des Bildes sind die schwarzen Terrassen wie zu erwarten noch kleiner geworden. Im unteren Teil, in dem bereits zuvor der schwarze Terrassentyp dominant war, ist diese Situation jedoch gerade invertiert. Hier sind die weißen Terrassen noch weiter geschrumpft, obwohl deren Dimerreihen parallel zu den Stufen verlaufen. Abbildung 4.15 (c) zeigt schließlich die Auswirkung weiterer Goldadsorption im Bereich der zweiten Dominanz. Hier zeigt sich ebenfalls, wie erwartet, im oberen Bereich die Umkehr der Terrassengrößen hin zu einer Dominanz der schwarzen Terrassen mit relativ zu den Stufen senkrechten Dimerreihen. Allerdings dreht sich auch im unteren Teil des Bildes das Größenverhältnis der Terrassen um, sodass dort der weiße Terrassentyp deutlich dominiert. Der untere Bereich zeigt folglich eine komplette Invertierung des diskutierten Dominanzeffektes, welche nur in der extrinsischen, lokalen Verspannung begründet sein kann. Das hier exemplarisch gezeigte Experiment legt die Vermutung nah, dass das System durch die extrinsische Verspannung der Probe gerade so getrieben wird, dass der bereits auf der sauberen Oberfläche dominierende Terrassentyp auch der in der ersten Domänendominanzphase vorherrschende Terrassentyp ist. Ein fundierter Erklärungsansatz kann aufgrund der enormen Komplexität von Experiment und Verspannungstheorie dazu allerdings nicht vorgebracht werden. Es konnte jedoch in einer Vielzahl an Experimenten konsistent gezeigt werden, dass auf Proben,

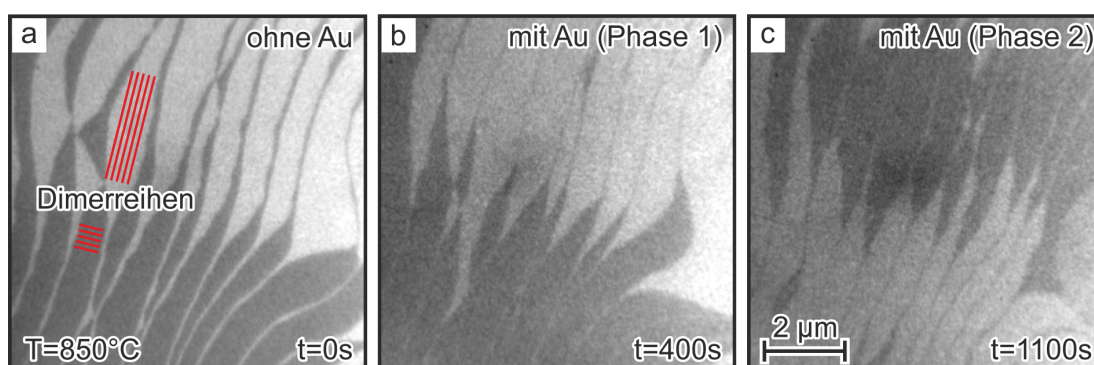


Abbildung 4.15: LEEM-Bilder einer extrinsisch verspannten Si(001)-Probe unter dem Einfluss der Goldadsorption. (a) Situation ohne Gold. In dem ausgewählten Bildausschnitt sind Bereiche unterschiedlicher Verspannungsrichtungen zu finden, die zu einer Dominanz des weißen Terrassentyps (oben) bzw. des schwarzen Terrassentyps (unten) führen. In rot ist zusätzlich für beide Terrassentypen die Richtung der Dimerreihen eingezeichnet. (b) Gold auf der Oberfläche führt in beiden Bereichen zu einer noch stärkeren Dominanz des bereits vorher dominierenden Terrassentyps. (c) Weitere Adsorption von Gold kehrt den Effekt gerade um, sodass kurz vor dem Aufrauungsphasenübergang plötzlich oben die schwarzen und unten die weißen Terrassen dominieren.

die aufgrund der anfänglich gleichverteilten Domänen unverspannt schienen, immer die im letzten Abschnitt ausführlich diskutierte Systematik hinsichtlich der beiden Dominanzbereiche auftritt.

Abschließend fällt bei nochmaliger Betrachtung der Auftragung der beiden Reflexintensitäten in Abbildung 4.11 auf, dass auch die in den Abschnitten 4.2 und 1.1.4 angesprochene Kalibrierung der Goldbedeckung mittels des Intensitätseinbruchs des LEED-Spots nicht eindeutig ist. Je nachdem welcher Reflex betrachtet wird und wie hoch die Depositionsrate ist, kann die Diskrepanz der beiden Einbrüche enorm sein. Deutlich ist dies beispielsweise in Abbildung 4.11 zu erkennen. Dort beträgt die zeitliche Differenz der beiden Intensitätseinbrüche etwa 60 s, was fast einem Drittel der Gesamtdauer dieses Experimentes entspricht. Eine solche Kalibrierung kann folglich höchstens bei sehr hohen Depositionsraten sinnvoll sein, bei denen beide Spots relativ zügig an Intensität verlieren. Aber auch bei relativ niedrigen Temperaturen unter etwa 800°C kann, wie im nächsten Abschnitt deutlich wird, die Goldbedeckung der Oberfläche auf diese Weise kalibriert werden. Überhaupt finden sich in dieser Arbeit aus diesem Grund ganz selten die Angabe einer konkreten Bedeckung. Möglichkeiten, um in Zukunft bei solchen Experimenten eventuell dennoch eine Bedeckung abschätzen zu können, finden sich im Abschnitt 4.5.

4.4.4 Temperatur- und Bedeckungsabhängigkeit

Die in den beiden vorigen Abschnitten gezeigten Experimente mit dem Ergebnis von zwei Bereichen unterschiedlicher Domänen-Dominanz sind bisher nur für zwei Temperaturen von etwa 850°C und 890°C diskutiert worden. Daher stellt sich weiterführend die Frage, ob dieses Ergebnis für den gesamten Hochtemperaturbereich konsistent ist. Um dies zu verifizieren, ist es notwendig, die oben gezeigten Experimente sowohl im Realraum, als auch in der Beugungsebene für verschiedene Probertemperaturen durchzuführen. Die auf diese Weise gewonnenen Daten können anschließend grafisch in einer Art “Phasendiagramm” zusammengefasst werden.

Eine solche Auftragung der Ergebnisse dieser Messreihen wird in Abbildung 4.16 dargestellt. Dort sind für insgesamt sechs verschiedene Oberflächentemperaturen zwischen 740°C und 1000°C jeweils LEEM- und LEED-Bilder als Funktion der deponierten Goldmenge gezeigt. Die genauen Temperaturen, bei denen die Messreihen durchgeführt wurden, sind auf der Hochachse aufgetragen und die Größen der LEEM-Gesichtsfelder finden sich jeweils neben dem ersten LEEM-Bild einer Serie. Wie auf diesen jeweils ersten Bildern einer sauberen Oberfläche bei einer Bedeckung von “Null” zu erkennen ist, handelt es sich bei den untersuchten Bereichen um unterschiedliche Proben mit teilweise verschiedenen Fehlneigungen und verschiedenen Strukturen auf der Oberfläche. Diese Mischung ist ganz bewusst so gewählt worden, um zu zeigen, dass das Ergebnis von eben diesen genannten Kriterien unabhängig ist. Insgesamt ergeben sich auf diese Weise neben der sauberen Si-Fläche noch vier weitere verschiedene Bereiche in diesem Diagramm in der gewählten Auftragung. Für Temperaturen unterhalb etwa 800°C gehen die bekannten Silizium (2×1)- und (1×2)-Rekonstruktionen bei der Deposition von Gold ohne weitere Auffälligkeiten in die diskutierte Gold ($5 \times 3, 2$)-Rekonstruktion über. In der Abbildung sind diesbezüglich jeweils drei Bilderpaare für eine Temperatur von 740°C und 790°C gezeigt. Dieser Übergang geschieht unabhängig von der Temperatur immer bei derselben Goldbedeckung auf der Oberfläche. Entsprechend kann für diesen Temperaturbereich auch die in den Abschnitten 4.2 und 1.1.4 angesprochene Kalibrierung der Goldbedeckung mittels des Einbruchs der Intensität des LEED-Spots verwendet werden.

Wie im letzten Abschnitt bereits diskutiert wurde, gilt diese Kalibrierungsmethode allerdings nicht mehr für Temperaturen oberhalb von etwa 800°C. Diese

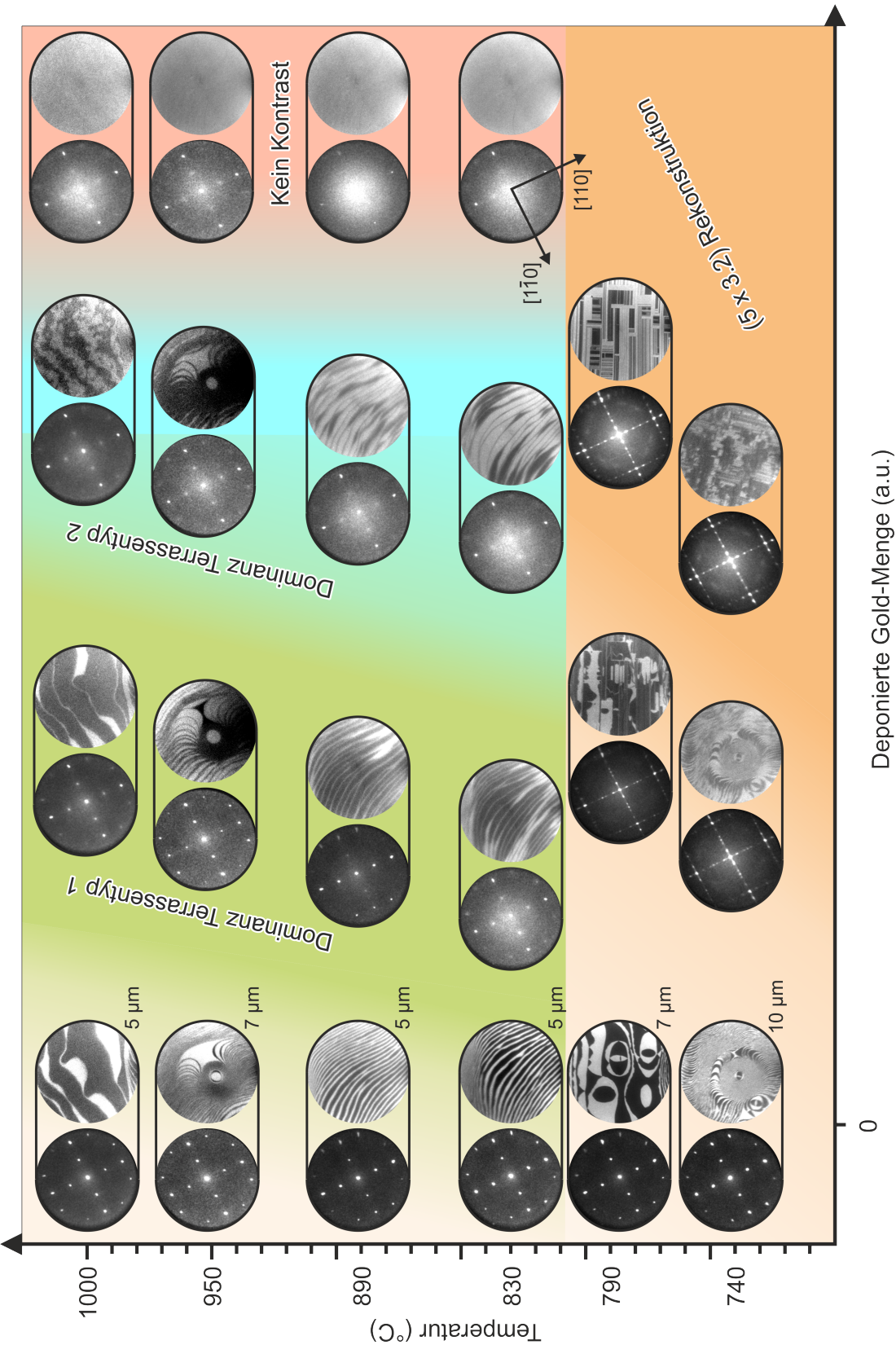


Abbildung 4.16: Vorangegangene Seite: Eine Art “Phasendiagramm” für die Si(001)-Oberfläche bei verschiedenen Temperaturen als Funktion der deponierten Goldmenge. Aus insgesamt sechs Experimenten bei unterschiedlichen Temperaturen sind jeweils ausgewählte LEED- und LEEM-Bilder für verschiedene Bedeckungen gezeigt. Für Temperaturen unter etwa 800°C gehen die Silizium-Rekonstruktionen ohne weitere Auffälligkeiten in die anfangs erwähnte Gold (5×3,2)-Rekonstruktion über. Für höhere Temperaturen sind mit steigender Depositionsmenge zunächst die zwei im letzten Abschnitt diskutierten Bereiche unterschiedlicher Terrassendominanzen zu beobachten. Weitere Deposition von Gold führt schließlich zum diskutierten Aufrauungsphasenübergang.

Grenze ist recht scharf, sodass in Abbildung 4.16 an dieser Stelle zur Verdeutlichung auch kein Farbverlauf gewählt wurde. Für den Hochtemperaturbereich werden in der Abbildung repräsentativ für 830°C, 890°C, 950°C und 1000°C jeweils vier Bilderpaare der diskutierten Experimente gezeigt. Für diese vier Temperaturen sind mit steigender Goldbedeckung zunächst die beiden im letzten Abschnitt diskutierten, charakteristischen Bereiche unterschiedlicher Terrassendominanzen zu beobachten. Weitere Deposition von Gold führt konsistent wieder zum Überschreiten des Aufrauungsphasenübergangs und damit zum Kontrastverlust in den LEEM-Bildern.

Eine große Herausforderung beim Erstellen dieses Diagramms stellte auch hier wieder eine konsistente Vergleichbarkeit der Goldbedeckung der Oberfläche dar. Für jede einzelne Messreihe macht die reine Aussage einer steigenden Goldbedeckung qualitativ keinen Unterschied, beim Vergleich der Bereichsgrenzen zwischen Experimenten bei unterschiedlichen Temperaturen, ist der Bezug auf eine gleiche Achsenskalierung jedoch ganz entscheidend. Mit steigender Temperatur steigt allerdings auch die Menge des von der Oberfläche desorbierenden Goldes. Daher ist es notwendig, die Depositionsrate zu erhöhen, um letztlich die gleiche Goldbedeckung auf der Oberfläche zu erreichen. Im Rahmen dieser Arbeit kann die Goldbedeckung im Hochtemperaturbereich als vergleichbare Größe für die verschiedenen Experimente folglich nur geschätzt werden. Für das in Abbildung 4.16 gezeigte Diagramm wurde daher als Rechtsachse nicht die Bedeckung, sondern die deponierte Goldmenge gewählt. Auf diese Weise können die im letzten Abschnitt diskutierten Ergebnisse quantitativ sehr gut zusammengefasst werden, auch wenn die einzelnen Experimente in vertikaler Richtung hinsichtlich der Goldmenge auf der Oberfläche nicht direkt verglichen werden können.

Insbesondere die genaue Orientierung der drei vertikalen Bereichsgrenzen für

Temperaturen über 800°C ist aus diesem Grund fehlerbehaftet. Um deren Verlauf genauer zu klären, sind zusätzlich Experimente durchgeführt worden, in denen Gold bei Temperaturen unterhalb von 800°C deponiert und die Probe anschließend erhitzt wurde. Auf diese Weise konnte zwar die anfängliche Goldbedeckung relativ gut bestimmt werden, allerdings ist davon auszugehen, dass diese in Folge erhöhter Desorption bei den höheren Temperaturen schnell gesunken ist. So war es mit diesen zusätzlichen Messreihen lediglich möglich, die Fußpunkte der vertikalen Bereichsgrenzen bei einer Temperatur von 800°C näher zu bestimmen. Weiterhin ist aus Abschnitt 4.3.3 bekannt, dass die Adsorption von Gold zur Reduktion der Aufrauungstemperatur führt. Entsprechend ist bei höheren Temperaturen weniger Gold auf der Oberfläche nötig, um den Aufrauungsphasenübergang zu erreichen. Bei einer Auftragung als Funktion der Bedeckung müsste die Grenze zwischen den Bereichen “Dominanz Terrassentyp 2” und “Kein Kontrast” entsprechend ebenfalls für höhere Temperaturen zu niedrigeren Bedeckungen hin verschoben sein. In der gewählten Auftragung in Abbildung 4.16 ist diese Grenze jedoch bewusst vertikal eingezeichnet, da es bei höheren Temperaturen auch einer größeren Menge an deponiertem Gold bedarf, um die gleiche Oberflächenbedeckung zu erreichen. Ähnlich kann der Verlauf der Bereichsgrenze zwischen “Dominanz Terrassentyp 1” und der sauberen Si-Oberfläche argumentiert werden. Hier ist davon auszugehen, dass der Beginn der Phase erster Terrassendominanz unabhängig von der Temperatur immer bei der gleichen Bedeckung stattfindet. Entsprechend des oben diskutierten Zusammenhangs von Bedeckung und Depositionsmenge ist diese Grenze folglich für höhere Temperaturen hin nach rechts verschoben. Der genaue Verlauf der dritten in Frage stehenden Grenze zwischen “Dominanz Terrassentyp 1” und “Dominanz Terrassentyp 2” kann hingegen nicht näher bestimmt werden. Die in der Abbildung eingezeichnete Grenze dient in diesem Fall lediglich der Veranschaulichung.

4.5 Zusammenfassung und Ausblick

In diesem Kapitel wurde der Einfluss der Adsorption von Gold auf die im letzten Kapitel analysierte Hochtemperaturkinetik einer leicht vizinalen Si(001)-Oberfläche untersucht. Dazu wurden zunächst eigene LEEM- und LEED-Daten des Wachstums von Gold auf Si(001) bei 790°C gezeigt und erläutert, wie bei diesen Tem-

peraturen eine Kalibrierung der Goldbedeckung auf der Oberfläche möglich ist. Weiterhin konnte dabei gezeigt werden, dass genügend Gold auf der Oberfläche die Si(001) LEED-Reflexe verschwinden lässt, was zu einem Kontrastverlust im Dunkelfeld-LEEM führt.

Es konnte verifiziert werden, dass die Adsorption von Gold auf der Oberfläche die Dimere aufspaltet und eine Bindung mit den Si-Oberflächenatomen eingeht. Auf diese Weise bildet sich auf der Oberfläche eine Legierung aus Gold und Silizium, welche aufgrund ihrer Eigenschaften als Eutektikum bezeichnet werden kann. Die Ausbildung dieses Oberflächeneutektikums führt schließlich zur Herabsetzung des Schmelzpunktes, also der fest/flüssig-Phasengrenze. Im Wesentlichen wirkt dieser Effekt so wie eine Reduktion der Aufrauungstemperatur und damit zum früheren Erreichen des Aufrauungsphasenübergangs. Aufgrund der hohen Temperaturen in den Experimenten und der daraus resultierenden hohen Mobilität der Goldatome auf den Terrassen, ist davon auszugehen, dass sich diese jedoch zunächst vornehmlich an den Stufenkanten anlagern und dort lokal ein entsprechendes Eutektikum bilden. Dadurch ist als erstes eine verstärkte Fluktuation der Stufenkanten zu beobachten, weil die Kinkenenergie verringert ist und sich die Atome daher leichter von der Stufe lösen und diffundieren können. Weitere Adsorption von Gold führt bei der bekannten Hügelstruktur schließlich zu einem deutlich beschleunigten Zerfall des Hügels. In den gezeigten Experimenten konnte dabei eine Beschleunigung um mehr als den Faktor neun beobachtet werden. Auf den Zerfall des Sattels hat die Deposition von Gold hingegen keinen Einfluss. Ein möglicher Erklärungsansatz ist der Folgende: Zwar wird aufgrund der erhöhten Stufenfluktuationen die Temperatur, bei der der Gibbs-Thomson-Effekt beginnt eine Rolle zu spielen, reduziert, allerdings nicht die Übergangstemperatur vom Diffusions- zum Desorptionsregime. Eine Desorption der Atome von der Oberfläche wird also nicht zwangsweise mit begünstigt. Auf diese Weise diffundiert genau soviel Material von dem Sattel weg, wie auch von den oberen Terrassen “nachfließt”. Insgesamt kann zusammengefasst werden, dass Gold den Zerfall von Hügeln begünstigt, den von Sätteln allerdings nicht. Da in dem untersuchten Temperaturbereich die Adsorption von Gold vollständig reversibel ist, kann die Deposition von Gold auch dazu verwendet werden, Si-Hügel noch schneller komplett zerfallen zu lassen und damit die Oberfläche, wie in Abschnitt 3.3.3 gezeigt, wieder zu glätten. Weiterhin konnte gezeigt werden, dass die Deposition von Gold auch keinen Einfluss auf den “Pairing”-Effekt hat. Diese Beobachtung ist

mit der diskutierten Erklärung einer reduzierten Aufrauungstemperatur aufgrund der Ausbildung eines Oberflächeneutektikums ebenfalls konsistent.

In weiteren Experimenten an einer regelmäßig gestuften Si(001)-Oberfläche konnte zudem eine bedeckungsabhängige Terrassendominanz beobachtet werden. Dabei führt bereits eine geringe Goldbedeckung neben einer verstärkten Stufenfluktuation auch zu einer deutlichen Dominanz des Terrassentyps mit parallel zu den Stufen orientierten Dimerreihen. Weiteres Gold auf der Oberfläche ändert die Situation dramatisch und führt zur Umkehr der Dominanzverhältnisse zu Gunsten des anderen Terrassentyps mit senkrecht zu den Stufen orientierten Dimerreihen. Ein fundierter Erklärungsansatz ist eine goldinduzierte Änderung des Gesamtverspannungsfeldes. Entsprechend Abschnitt 4.3.3 würde dies im ersten Schritt durch die Stufendekoration und eine damit verbundene Veränderung der Verspannungsdipole, und im zweiten Schritt durch die Terrassendekoration und eine damit verbundene Modifikation des Verspannungstensors geschehen. Durch die nach Abschnitt 1.1.3 angestrebte Minimierung der Energie des Gesamtverspannungsfeldes sind diese beiden Schritte durch die zu beobachtende Verschiebung der Stufen begleitet. Die diskutierte Systematik konnte reproduzierbar zumindest für unverspannt scheinende Proben, auf denen anfänglich keiner der beiden Terrassentypen dominiert hat, verifiziert werden. Experimente an offensichtlich extrinsisch verspannten Proben zeigen zwar ebenfalls die beiden diskutierten Dominanzbereiche, werden aber vermutlich zunächst unabhängig von der Orientierung der Dimerreihen in die Dominanz des anfänglich bereits vorherrschenden Terrassentyps getrieben. Eine begründete Modellvorstellung zur Erklärung dieses Phänomens konnte speziell für extrinsisch verspannte Proben im Rahmen dieser Arbeit nicht gefunden werden.

Für deutlich stärker fehlgeneigte Si(001)-Oberflächen ist das beobachtete Zusammenschieben von Stufen ein erster Schritt zu einer möglichen Facettierung, der so bisher noch nicht beobachtet wurde. Temperaturabhängige Messreihen solcher Experimente haben gezeigt, dass diese Dominanzeffekte erst oberhalb von etwa 800°C auftreten. Für tiefere Temperaturen ist ein regulärer Übergang zur bekannten Gold (5 × 3, 2)-Rekonstruktion zu beobachten. Die Ergebnisse dieser Messreihen können entsprechend gut grafisch in einer Art “Phasendiagramm” zusammengefasst werden, aus dem die wichtigsten Änderungen der Oberfläche in Abhängigkeit von Temperatur und Goldbedeckung qualitativ hervorgehen.

Aufbauend auf den hier gezeigten Experimenten kann als Ausblick zunächst eine

Kalibrierung der Goldbedeckung für den gesamten Hochtemperaturbereich angestrebt werden. Aus den diskutierten Gründen gilt die in den Abschnitten 4.2 und 1.1.4 vorgestellte Kallibrierungsmöglichkeit nur für Temperaturen bis etwa 800°C. Um auch für höhere Temperaturen sinnvoll eine Goldbedeckung angeben zu können, wäre aufgrund der submonolagen Bedeckung eine Möglichkeit der Versuch *in-situ* AES-Messungen durchzuführen. Darüber hinaus könnte versucht werden, die Bedeckung unmittelbar an der Probe mit einem Schwingquarz zu messen. Der verwendete Schwingquarz müsste dabei auf dieselbe Temperatur wie die Probe geheizt werden, denn nur so kann eine zumindest annähernd vergleichbare Desorptionsrate und damit eine ähnliche Goldbedeckung erzielt werden. Zudem müsste der Schwingquarz ebenfalls auf dem selben Potential wie die Probe liegen und so in den Probenhalter integriert sein, dass es weder Probleme mit der Hochspannung, noch mit Streufeldern gibt. Auf diese Weise wäre es jedoch möglich, ein wie in Abbildung 4.16 gezeigtes Diagramm hinsichtlich der Bedeckungsachse so zu korrigieren, dass die gezeigten Bereichsgrenzen nicht nur qualitativ, sondern auch quantitativ über den gesamten Temperaturbereich vergleichbar sind. Insbesondere die Lage der vertikalen Grenzen könnte so deutlich genauer bestimmt werden. Darüber hinaus ist eine Kalibrierung der Goldbedeckung auch Grundlage für eine sinnvolle Auswertung der gesteigerten Stufenfluktuationen. Zusätzlich ist es dafür allerdings auch erforderlich die Goldbedeckung über einen gewissen Zeitraum konstant halten zu können. Denn nur so kann die Fluktuation der Stufen quantitativ ausgewertet werden. Insbesondere bei sehr hohen Temperaturen und den damit notwendigen hohen Leistungen des Goldverdampfers, war es aber trotz einer automatisierten Verdampfersteuerung nicht möglich, einen eingestellten Leistungssollwert konstant zu halten. In jedem Fall sollte die in Ausblick gestellte Schwingquarzelektronik mit der Verdampfersteuerung gekoppelt werden, sodass zumindest eine Diskrepanz zwischen konstanter Verdampferleistung und konstanter Goldbedeckung auf der Oberfläche vermieden werden kann.

Hinsichtlich der goldinduzierten Terrassendominanzen wäre es als Ausblick zunächst ebenfalls interessant, die genaue Goldbedeckung auf der Oberflächen an den Höhepunkten der jeweiligen Dominanzen zu kennen. Auf diese Weise kann bestenfalls der diskutierte Erklärungsansatz weiter fundiert werden. Darüber hinaus könnte eine systematische Messreihe an unterschiedlichen Terrassenbreiten Aufschluss über die Stärke des Effektes in Abhängigkeit vom Stufenabstand geben und so eventuell verifizieren, dass der Effekt wirklich auf der $1/L^2$ -Wechselwirkung

der Stufenverspannungsdipole beruht. Weiterhin kann hier an den Ausblick des letzten Kapitels 3.5 angeknüpft werden. Dort wurden Möglichkeiten diskutiert, eine Probe im LEEM gezielt und variabel extrinsisch zu verspannen. Die dafür notwendige Modifikation des LEEM-Probenhalters wäre auch an dieser Stelle der nächste logische Schritt, um die goldinduzierten Terrassendominanzen in Abhängigkeit von Stärke und Richtung der extrinsischen Verspannung zu analysieren. Um die diskutierten Effekte vollends zu verstehen, wird es jedoch letztlich noch weitgehendere verspannungstheoretische Berechnungen und Simulationen brauchen.

Literaturverzeichnis

- [1] Ch. E. Mortimer and U. Müller. *Chemie, Das Basiswissen der Chemie*. Thieme, Stuttgart, 2007.
- [2] Martienssen and Warlimont, editors. *Springer Handbook of Condensed Matter and Materials Data*. Springer, 2005.
- [3] W. H. Miller. A Treatise on Crystallography. *Deighton Cambridge*, 1839.
- [4] D. Haneman. Review of Electron Paramagnetic Resonance Investigations of Semiconductor Surfaces. *Japanese Journal of Applied Physics Supplement* 2:2, 13:371, 1974.
- [5] B. P. Lemke and D. Haneman. Dangling Bonds on Silicon. *Phys. Rev. B*, 17:1893, 1978.
- [6] A. Meier. Der Schritt von atomaren Stufen zu Superterrassen auf vicinalen Si(001). Dissertation, Universität Hannover, 1997.
- [7] S. Sindermann. LEEM und PEEM Untersuchungen zur Entstehung von Nanodrähten durch Selbstorganisation im System Ag/Si. Diplomarbeit, Universität Duisburg-Essen, 2008.
- [8] J. D. Levine. Structural and Electronic Model of Negative Electron Affinity on the Si/Cs/O Surface. *Surface Science*, 34:90, 1973.
- [9] C. B. Duke. Surface Structures of Tetrahedrally Coordinated Semiconductors: Principles, Practice, and Universality. *Applied Surface Science*, 65:543, 1993.
- [10] P. N. Keating. Effect of Invariance Requirements on the Elastic Strain Energy of Crystals with Application to the Diamond Structure. *Physical Review*, 145:637, 1966.

- [11] E. A. Wood. Vocabulary of Surface Crystallography. *J. Appl Phys.*, 35(4):1306, 1964.
- [12] P. Zahl. Kinetik der Vielfachstufenbildung von Si(001) durch Ag Adsorption. Diplomarbeit, Universität Hannover, 1996.
- [13] F.-J. Meyer zu Heringdorf. Goldinduzierte Nanostrukturierung vicinaler Si(001) Oberflächen. Dissertation, Universität Hannover, 1999.
- [14] A. Ramstad, G. Brocks, and P. J. Kelly. Theoretical Study of the Si(100) Surface Reconstruction. *Phys. Rev. B*, 51:14504, 1995.
- [15] K. Wandelt, editor. *Surface and Interface Science Volume 2*. WILEY-VCH, 2012.
- [16] D.J. Chadi. Stabilities of Single-Layer and Bilayer Steps on Si(001) Surfaces. *Phys. Rev. Lett.*, 59:1691, 1987.
- [17] B. S. Swartzentruber, Y.-W. Mo, R. Kariotis, M. G. Lagally, and M.B. Webb. Direct Determination of Step and Kink Energies on Vicinal Si(001). *Phys. Rev. Lett.*, 65:1913, 1990.
- [18] J Tersoff and E. Pehlke. Equilibrium Crystal Shape of Silicon near (001). *Phys. Rev. B.*, 47:4072, 1993.
- [19] J. J. de Miguel, C. E. Aumann, R. Kariotis, and M. G. Lagally. Evolution of Vicinal Si(001) from Double- to Single-Atomic-Height Steps with Temperature. *Phys. Rev. Lett.*, 67:2830, 1991.
- [20] O.L. Alerhand, D. Vanderbilt, R. D. Meade, and J. D. Joannopoulos. Spontaneous Formation of Stress Domains on Crystal Surfaces. *Phys. Rev. Lett.*, 61:1973, 1988.
- [21] J Tersoff and E. Pehlke. Sinuous Step instability on the Si(001) Surface. *Phys. Rev. Lett.*, 68:816, 1992.
- [22] R. M. Tromp and M. C. Reuter. Wavy Steps on Si(001). *Phys. Rev. Lett.*, 68:820, 1992.
- [23] R. M. Tromp and M. C. Reuter. Step Morphologies on Small-Miscut Si(001) Surfaces. *Phys. Rev. B*, 47:7598, 1993.

- [24] M. C. Payne, N. Roberts, R. J. Needs, M. Needels, and J. D. Joannopoulos. Total Energy and Stress of Metal and Semiconductor Surfaces. *Surface Science*, 211/212:1–20, 1989.
- [25] P. Hecquet. Surface Stress Modifies Step-Step Interaction Energy with Respect to the Marchenko-Parshin Model. *Surface Science*, 602:819–828, 2008.
- [26] V. I. Marchenko and A. Ya. Parshin. Elastic Properties of Crystal Surfaces. *Zh. Eksp. Teor. Fiz.*, 79:257–260, 1980.
- [27] M. B. Webb, F. K. Men, B. S. Swartzentruber, R. Kariotis, and M. G. Lagally. Surface Step Configuration under Strain: Kinetics and Step-Step Interactions. *Surface Science*, 242:23–31, 1991.
- [28] M. B. Webb. Strain Effects on Si(001). *Surface Science*, 299/300:454–468, 1994.
- [29] F. K. Men, W. E. Packard, and M. B. Webb. Si(100) Surface under an Externally Applied Stress. *Phys. Rev. Lett.*, 61:2469, 1988.
- [30] M. Kageshima, Y. Torii, Y. Tano, O. Takeuchi, and A. Kawazu. Study of Au-induced Reconstruction on Si(001) Surface by Scanning Tunneling Microscopy and Low Energy Electron Diffraction. *Surface Science*, 472:51, 2001.
- [31] V. G. Lifshits, A. A. Saranin, and A. V. Zotov. *Surface Phases on Silicon*. WILEY-VCH, 1994.
- [32] K. Oura and T. Hanawa. LEED-AES Study of the Au-Si(100) System. *Surface Science*, 82:202, 1979.
- [33] X. F. Lin, K. J. Wan, J. C. Glueckstein, and J. Nogami. Gold-induced Reconstructions of the Si(001) Surface: The 5x3 and $\sqrt{26}$ x3 Phases. *Phys. Rev. B*, 47:3671, 1993.
- [34] F.-J. Meyer zu Heringdorf, D. Kähler, M. Horn-von Hoegen, Th. Schmidt, E. Bauer, M. Copel, and H. Minoda. Giant Faceting of Vicinal Si(001) induced by Au Adsorption. *Surf. Rev. and Lett.*, 5:1167, 1998.

- [35] M. Horn-von Hoegen, H. Minoda, K. Yagi, F.-J. Meyer zu Heringdorf, and D. Kähler. Macroscopic One-Dimensional Faceting of Si(100) upon Au Adsorption. *Surface Science*, 402-404:464–469, 1998.
- [36] D. Kähler. Facettierung von vicinalen Si(001)-Flächen bei Adsorption von Gold. Master’s thesis, Institut für Festkörperphysik, Universität Hannover, 1997.
- [37] R. Hild. STM-Untersuchungen zur atomaren Struktur der Gold-induzierten Rekonstruktion auf vicinalem Si(001). Master’s thesis, Institut für Festkörperphysik, Universität Hannover, 1998.
- [38] R. Hild, F.-J. Meyer zu Heringdorf, P. Zahl, and M. Horn-von Hoegen. Au induced Regular Ordered Striped Domain Wall Structure of a (5x3) Reconstruction on Si(001) Studied by STM and SPA-LEED. *Surface Science*, 454-456:851, 2000.
- [39] B. Blagojevic and P. M. Duxbury. *Dynamics of Crystal Surfaces and Interfaces, From Atomic Diffusion and Step Dynamics*. Springer, 1997.
- [40] H. Ibach. *Physics of Surfaces and Interfaces*. Springer, 2006.
- [41] A. Pimpinelli, J. Villain, D. E. Wolf, J. J. Metois, J. C. Heyraud, I. Elkinani, and G. Uimini. Equilibrium Step Dynamics on Vicinal Surfaces. *Surface Science*, 295:143, 1993.
- [42] W. Selke. Dynamische Stufen auf Kristalloberflächen. *Physik Journal*, 7:33, 2004.
- [43] M Giesen. Step and Island Dynamics at Solid/Vacuum and Solid/Liquid Interfaces. *Progress in Surface Science*, 68:1, 2001.
- [44] A. B. Pang, K. L. Man, M. S. Altman, T. J. Stasevich, F. Szalma, and T. L. Einstein. Step Line Tension and Step Morphological Evolution on the Si(111) (1x1) Surface. *Phys. Rev. B*, 77:115424–1, 2008.
- [45] M. E. Fisher. Walks, Walls, Wetting, and Melting. *Journal of Statistical Physics*, 34:667, 1984.
- [46] N. C. Bartelt and R. M. Tromp. Low-Energy Electron Microscopy Study of Step Mobilities on Si(001). *Phys. Rev. B*, 54:11731, 1996.

- [47] R. L. Schwoebel. Step Motion on Crystal Surfaces. *Journal of Applied Physics*, 40:614, 1969.
- [48] G. S. Bales and A. Zangwill. Morphological Instability of a Terrace Edge during Step-Flow Growth. *Phys. Rev. B.*, 41:5500, 1990.
- [49] H. J. W. Zandvliet. Energetics of Si(001). *Reviews of Modern Physics*, 72:593, 2000.
- [50] H. Iwasaki and T. Yoshinobu. Thermal and Kinetic Surface Roughening Studied by Scanning Tunneling Microscopy and Atomic Force Microscopy. *Phase Transitions*, 53:235, 1995.
- [51] N. C. Bartelt, R. M. Tromp, and E. D. Williams. Step Capillary Waves and Equilibrium Island Shapes on Si(001). *Phys. Rev. Lett.*, 73:1656, 1994.
- [52] G. A. Held, J. L. Jordan-Sweet, P. M. Horn, A. Mak, and R. J. Birgeneau. X-ray Scattering Study of the Thermal Roughening of Ag(110). *Phys. Rev. Lett.*, 59:2075, 1987.
- [53] Y. Cao and E. H. Conrad. Approach to Thermal Roughening of Ni(110): A Study by High-Resolution Low-Energy Electron Diffraction. *Phys. Rev. Lett.*, 64:447, 1990.
- [54] H.-C. Jeong and E. D. Williams. Steps on Surfaces: Experiment and Theory. *Surface Science Reports*, 34:171, 1999.
- [55] M. Giesen, Ch. Steimer, and H. Ibach. What does One Learn from Equilibrium Shapes of Two-Dimensional Islands on Surfaces? *Surface Science*, 471:80–100, 2001.
- [56] J.S. Rowlinson and B. Widom. *Molecular Theory of Capillarity*. Clarendon Press, Oxford, 1982.
- [57] M. P. Seah and W. A. Dench. Quantitative Electron Spectroscopie of Surfaces: A Standard Data Base for Electron Inelastic Mean Free Paths in Solids. *Surface and Interface Analysis*, 1(1):46, 1979.
- [58] M. Henzler and W. Göpel. *Oberflächenphysik des Festkörpers*. Teubner Studienbücher, 1994.

- [59] P. P. Ewald. Zur Theorie der Interferenzen der Röntgenstrahlen in Kristallen. *Phys. Z.*, 14:465, 1913.
- [60] E. Bauer. Low Energy Electron Reflection Microscopy. *Fifth International Congress for Electron Microscopy*, 1:D–11, 1962.
- [61] E. Bauer. Low Energy Electron Microscopy. *Reports on Progress in Physics*, 57(9):895–938, 1994.
- [62] W. Telieps and E. Bauer. An Analytical Reflection and Emission UHV Surface Electron Microscope. *Ultramicroscopy*, 17:57, 1985.
- [63] E. Bauer. LEEM Basics. *Surf. Rev. Lett.*, 05:1275, 1998.
- [64] R. M. Tromp and M. C. Reuter. Design of a New Photo-Emission/Low-Energy Electron Microscope for Surface Studies. *Ultramicroscopy*, 36:99, 1991.
- [65] Th. Schmidt, S. Heun, J. Slezak, J. Diaz, K.C. Prince, G. Lilienkamp, and E. Bauer. SPELEEM: Combining LEEM and Spectroscopic Imaging. *Sur. Rev. and Lett.*, 5(6):1287–1296, 1998.
- [66] P. Kahl, S. Wall, C. Witt, C. Schneider, D. Bayer, P. Melchior, M. Horn-von Hoegen, M. Aeschlimann, and F.-J. Meyer zu Heringdorf. Normal-Incidence Photoemission Electron Microscopy (NI-PEEM) for Imaging Surface Plasmon Polaritons. *Plasmonics*, 9:1401–1407, 2014.
- [67] A. Einstein. Über einen die Erzeugung und Verwandlung des Lichtes betreffenden heuristischen Gesichtspunkt. *Annalen der Physik*, 322(6):132–148, 1905.
- [68] H. Bethge and M. Klaua. Photo-Electron Emission Microscopy of Work Function Changes. *Ultramicroscopy*, 11:207, 1983.
- [69] L. H. Veneklasen. Design of a Spectroscopic Low-Energy Electron Microscope. *Ultramicroscopy*, 36:76, 1991.
- [70] M. Mankos, V. Kolarik, and L. H. Veneklasen. Electron-Optical Properties of Multiple Magnetic Prism Systems. *Nuclear Instruments & Methods in Physics Research, Section A*, 298:189–198, 1990.

- [71] Th. Schmidt, S. Heun, J. Slezak, K.C. Diaz, J. Prince, G. Lilienkamp, and E. Bauer. SPELEEM: Combining LEEM and Spectroscopic Imaging. *Surf. Rev. and Lett.*, 5(6):1287–1296, 1998.
- [72] E. Bauer. The Resolution of the Low Energy Electron Reflection Microscope. *Ultramicroscopy*, 17:51–56, 1985.
- [73] E. Bauer, M. Mundschau, W. Swiech, and W. Telieps. Surface Studies by Low-Energy Electron Microscopy (LEEM) and Conventional UV Photoemission Electron Microscopy (PEEM). *Ultramicroscopy*, 31(1):49 – 57, 1989.
- [74] M. S. Altman. Trends in Low Energy Electron Microscopy. *Journal of Physics: Condensed Matter*, 22:084017, 2010.
- [75] M. Horn von Hoegen. Growth of Semiconductor Layers Studied by Spot Profile Analysing Low Energy Electron Diffraction. *Zeitschrift für Kristallographie*, 214:1–75, 1999.
- [76] D. Thien. *Der Weg zur zeitaufgelösten Photoemissionsmikroskopie an adsorbatbedeckten Silizium Oberflächen*. Doktorarbeit, Universität Duisburg-Essen, 2007.
- [77] Rüdiger Hild. *Sb und Bi als Surfactants auf Si(001) und in der Ge-Heteroepitaxie auf Si(111)*. Dissertation, Universität Duisburg-Essen, 2007.
- [78] B. Gerfen. Messungen mit einem Pyrometer an verschiedenen Strahlungsquellen. Master's thesis, Universität Hannover, 1999.
- [79] J. J. Lander. Chemisorption and Ordered Surface Structures. *Surface Science*, 1:125–164, 1964.
- [80] P. A. Bennett and M. W. Webb. The Si(111) 7x7 to "1x1" Transition. *Surface Science*, 104:74–104, 1981.
- [81] J. J. Metois and D. E. Wolf. Kinetic Surface Roughening of Si(001) during Sublimation. *Surface Science*, 298:71–78, 1993.
- [82] B. Voigtländer, T. Weber, P. Smilauer, and D. E. Wolf. Transition from Island Growth to Step-Flow Growth for Si/Si(100) Epitaxy. *Phys. Rev. Lett.*, 78:2164, 1997.

- [83] C. Schelling, G. Springholz, and F. Schäffler. Kinetic Growth Instabilities in Vicinal Si(001) Surfaces. *Phys. Rev. Lett.*, 83:995, 1999.
- [84] M. Mundschau, E. Bauer, W. Teliëps, and W. Swiech. Atomic Steps on Si(100) and Step Dynamics during Sublimation studied by Low-Energy Electron Microscopy. *Surface Science*, 223:413, 1989.
- [85] E. Bauer. *Phys. Blätt.*, 44:255–9, 1988.
- [86] N. C. Bartelt, W. Theis, and R. M. Tromp. Oswald Ripening of Two-Dimensional Islands on Si(001). *Phys. Rev. B*, 54:11 741, 1996.
- [87] W. Swiech and E. Bauer. The Growth of Si on Si(100): A Video-LEEM Study. *Surface Science*, 255:219, 1991.
- [88] W. Theis and R. M. Tromp. Nucleation in Si(001) Homoepitaxial Growth. *Phys. Rev. Lett.*, 76:2770, 1996.
- [89] <http://vietnamexpresstravel.com/wp-content/uploads/2015/10/sapa-vietnam-vietnam-express-travel-3.jpg>, 21.01.2016.
- [90] A. V. Latyshev, A. B. Krasil'nikov, A. L. Aseev, and S. I. Stenin. Effect of Electric Current on the Ratio of the Areas of the (2x1) and (1x2) Domains at the clean (001) Surface of Silicon during Sublimation. *Pis'ma Zh. Eksp. Teor. Fiz.*, 48:484–487, 1988.
- [91] F. Szalma, Hailu Gebremariam, and T. L. Einstein. Fluctuations, Line Tension, and Correlation Time of Nanoscale Island on Surfaces. *Phys. Rev. B*, 71:35422, 2005.
- [92] S. Tanaka, N. C. Bartelt, C. C. Umbach, R. M. Tromp, and J. M. Blakely. Step Permeability and Relaxation of Biperiodic Gratings on Si(001). *Phys. Rev. Lett.*, 78:3342, 1997.
- [93] C. Ebner, D. E. Jones, and J. P. Pelz. Equilibrium Configuration of Atomic Steps on Vicinal Si(001) Surfaces with External Biaxial Strain. *Phys. Rev. B.*, 56:1581, 1997.
- [94] F. Leonard and J Tersoff. Competing Step Instabilities at Surfaces under Stress. *Applied Physics Letters*, 83:72, 2003.

- [95] V. Zielasek, Feng Liu, Yuegang Zhao, J. B. Maxson, and M. G. Lagally. Surface Stress-Induced Island Shape Transition in Si(001) Homoepitaxy. *Phys. Rev. B*, 64:201320–1, 2001.
- [96] C. S. Chang, Y. M. Huang, and T. Tsong. Strain-Direction-Dependent Growth Morphology of Vicinal Si(001) Surface. *Phys. Rev. Lett.*, 77:2021, 1996.
- [97] C. S. Chang and T. Tsong. Anisotropic Strain Effect on Morphology and Atomic Structure of Vicinal Si(001) Surface. *Progress in Surface Science*, 54:387, 1997.
- [98] L. Zhong, A. Hojo, Y. Matsushita, Y. Aiba, K. Hayashi, R. Tekeda, H. Shirai, H. Saito, J. Matsushita, and J. Yoshikawa. Evidence of Spontaneous Formation of Steps on Silicon (100). *Phys. Rev. B*, 54:2304, 1996.
- [99] G. Le Lay. Physics and Electronics of the Noble-Metal/Elemental-Semiconductor Interface Formation: A Status Report. *Surface Science*, 132:169, 1983.
- [100] A Hiraki. Low Temperature Reactions at Si/Metal Interfaces; What is going on at the Interfaces? *Surface Science Report*, 3:357–412, 1983.
- [101] C. Calandra, O. Bisi, and G. Ottaviani. *Surface Science Report*, 4:271, 1985.
- [102] K. Yagi, H. Minoda, and M. Degawa. Step Bunching, Step Wandering and Faceting: Self-Organization at Si Surfaces. *Surface Science Reports*, 43:45, 2001.
- [103] Christian Witt. in preparation. Dissertation, Universität Duisburg-Essen.
- [104] Christian Witt. private communication.
- [105] Z. H. Lu, T. K. Sham, S. Griffiths, and P. R. Norton. Studies of Au Interaction on Si (100) by Photoemission Spectroscopy. *Solid State Communications*, 76:113–116, 1990.
- [106] Weiwei Ju and Tongwei Li. Adsorption of the Au Atom on Si(001) Surface. *Key Engineering Materials*, 336:2521, 2007.

- [107] W. C. A. N. Ceelen, B. Moest, M. de Ridder, L. J. van IJzendoorn, A. W. Denier van der Gon, and H. H. Brongersma. Ultrathin Au Layers on Si(100): Surface Silicide Formation at Room Temperature. *Surface Science*, 134:87, 1998.
- [108] A. Cros, J. Derrien, C. Mouttet, J. P. Gaspard, P. Lambin, and F. Salvan. Electron Spectra of the Amorphous AuSi Interface. *Journal de Physique Colloques*, 41:795, 1980.
- [109] H. Jongyoon, D. Jeon, and Y. Kuk. Surface Crystalline Gold Silicide Formation on the Au(100) Surface. *Surface Science*, 376:237–244, 1997.
- [110] W. C. A. N. Ceelen, M. de Ridder, B. Moest, A. W. Denier van der Gon, and H. H. Brongersma. Morphology and Composition of Au Films on Si(100). *Surface Science*, 430:146, 1999.
- [111] H. Okamoto and T. B. Massalski. The Au-Si (Gold-Silicon) System. *Bulletin of Alloy Phase Diagrams*, 4:190, 1983.
- [112] A. L. Pinardi, S. J. Leake, R. Felici, and I. K. Robinson. Formation of an Au-Si Eutectic on a Clean Silicon Surface. *Phys. Rev. B*, 79:045416, 2009.
- [113] O. G. Shpyrko, R. Streitel, V. S. K. Balagurusamy, A. Y. Grigoriev, M. Deutsch, B. M. Ocko, M. Meron, B. Lin, and P. S. Pershan. Crystalline Surface Phases of the Liquid Au-Si Eutectic Alloy. *Phys. Rev. B*, 76:245436, 2007.
- [114] T. U. Schüllli, R. Daudin, G. Renaud, A. Vaysset, O. Geaymond, and A. Pasturel. Substrate-Enhanced Supercooling in AuSi Eutectic Droplets. *Nature*, 464:1174, 2010.
- [115] J. B. Maxson, D. E. Savage, F. Liu, R. M. Tromp, M. C. Reuter, and M. G. Lagally. Thermal Roughening of a Thin Film: A New Type of Roughening Transition. *Phys. Rev. Lett.*, 84:2152, 2000.
- [116] B. S. Swartzentruber, Y. W. Mo, and M. G. Lagally. Domain Boundary Control of Edge Roughness in Vicinal Si(001). *Applied Physics Letters*, 58:822, 1991.
- [117] H. J. W. Zandvliet, B. Poelsema, and H. B. Elswijk. Fluctuations of Monoatomic Steps on Si(001). *Phys. Rev. B*, 51:5465, 1995.

- [118] M. Kammler, M. Horn-von Hoegen, N. Voss, M. Tringides, A. Menzel, and E. H. Conrad. Si(001) Step Dynamics: A Temporal Low-Energy Electron Diffraction Study. *Phys. Rev. B*, 65:075312–1, 2002.
- [119] N. C. Bartelt, T. L. Goldberg, T. L. Einstein, and E. D. Williams. The Equilibration of Terraces Width Distribution on Stepped Surfaces. *Surface Science*, 273:252–260, 1992.
- [120] N. C. Bartelt, T. L. Einstein, and E. D. Williams. Measuring Surface Mass Diffusion Coefficients by Observing Step Fluctuations. *Surface Science*, 312:411, 1994.
- [121] P. Hecquet. Surface Stresses on Symmetric (2x1) Reconstructed Si(001) Calculated from Surface Energy Variations. *Surface Science*, 618:83–87, 2013.
- [122] P. Hecquet. Subcritical Damping of SA Step Energy on Si(001) Vicinals by Lowering Terrace Stress. *Surface Science*, 639:1, 2015.

Danksagung

So eine Dissertation, und damit auch die gesamte diesbezüglich geleistete Arbeit während der Promotion, kann unmöglich von einer Person alleine gestemmt werden. Auch wenn nur mein Name auf dieser Arbeit steht, so gebührt vielen weiteren Personen ein nicht unerheblicher Anteil an diesem Erfolg. Eben diese Personen möchte ich im Folgenden namentlich erwähnen und ihnen insbesondere meinen tiefsten Dank aussprechen:

Zuallererst einmal möchte ich mich bei meinem Doktorvater Prof. Dr. Frank Meyer zu Heringdorf bedanken. Er stand mir in den gesamten letzten Jahren immer mit Rat und Tat zur Seite und hat meine Promotion in die richtige Richtung geschoben. Auch in schweren und frustrierenden Zeiten hat er mich stets unterstützt und immer versucht, für mich die beste Lösung zu finden.

Prof. Dr. Horn-von Hoegen möchte ich dafür danken, dass er mir die Möglichkeit gegeben hat, in seiner Arbeitsgruppe zu promovieren. Mit Freude war er auch immer für wissenschaftliche Diskussionen zu haben und hat mir dabei immer wieder entscheidende Denkanstöße gegeben.

Ich danke Lothar Brendel, Theodore Einstein, Norman Bartelt und Eckhard Pehlke für die schnelle und unkomplizierte Unterstützung hinsichtlich der theoretischen Diskussionen dieser Arbeit.

Für das wissenschaftliche bzw. sprachliche Korrekturlesen dieser Arbeit möchte ich mich herzlich bei Simon Sindermann, Claudius Klein und meiner Frau Sandra bedanken.

Ich bedanke mich bei Christian Witt für die vielen konstruktiven gemeinsamen Labortage, aber auch für die vielen gemeinsamen Reparaturen am Mikroskop; geteilter Frust ist halber Frust.

Bei Simon Sindermann und Philip Kahl bedanke ich mich für die vielen feuchtfröhlichen Abende auf diversen Konferenzen, die vielen spannenden Vorträge in LW 001 und natürlich auch ebenfalls für die gute Zusammenarbeit im Labor.

Unseren Technikern Lukas Kujawinski und Heinz Wolf gilt an dieser Stelle ebenfalls ein Dankeschön, da sie sich zumindest auf Nachdruck in den meisten Fällen um meine technischen Probleme gekümmert haben und damit insgesamt meine Arbeit vor weiteren Verzögerungen bewahrt haben.

Für die lustige und angenehme Arbeitsatmosphäre während meiner Promotion möchte ich mich natürlich auch bei allen weiteren Mitarbeitern bedanken. Insbesondere sind hier Claudius Klein, Tim Frigge, Bernd Hafke, Sven Meier und Tim Becker zu nennen, die mich ebenfalls mit Freude zu den Vorträgen in LW 001 begleitet haben und mit denen ich auch außerhalb der Universität sehr oft viel Spaß hatte.

Zuletzt sind es natürlich nicht nur meine Arbeitskollegen, die mich bei meiner Promotion unterstützt haben, sondern auch meine Freunde und meine Familie. Insbesondere möchte ich mich auch hier nochmal bei meiner Frau Sandra bedanken, die mich die ganzen Jahre immer wieder motiviert hat und mir in den entscheidenden Momenten den Rücken frei gehalten hat, damit ich mich voll auf mein Promotionsziel konzentrieren konnte.

A1 Konstruktion und Aufbau einer neuen LEEM-Probenbühne

A1.1 Einleitung und Motivation

Zu Beginn der Promotion sollte ursprünglich ein älteres IBM-LEEM repariert und an diesem später auch Messungen für die Dissertation durchgeführt werden. Diese Maschine wurde bis etwa ein Jahr vor Beginn meiner Promotion auch noch regelmäßig im Messbetrieb verwendet, allerdings gab es dabei immer häufiger Probleme mit der Probenbühne. Aufgrund der Tatsache, dass zu dieser Zeit im Nachbarlabor ein deutlich moderneres PEEM der Firma ELMITEC zu dem im Abschnitt 2.2 beschriebenen LEEM aufgerüstet wurde, erschien eine Reparatur des IBM-LEEMs nicht mehr so dringlich und sollte erst im Rahmen meiner Promotion durchgeführt werden.

Als Hauptproblematik bei der vorhandenen Probenbühne stellte sich schnell ein leichtes Verkanten der gesamten Bühne bei Zug bzw. Schub durch die Motoren heraus, da diese nicht mittig an den entsprechend zu fahrenden Teilen, sondern seitlich angebracht waren. Bei den Motoren handelte es sich um sogenannte Inchworms, deren Arbeitsprinzip, dem Namen entsprechend, der Fortbewegung einer Raupe ähnelt. Mit Hilfe von Piezo-Motoren bewegen sich diese Inchworms über ein Keramikrohr. Die Inchworm Motoren sind zwar recht robust in Bezug auf senkrechte Schub- und Zugkräfte, allerdings auch sehr anfällig gegen leichtes Verkanten und den daraus resultierenden Scherkräften. Entsprechend häufig waren diese Motoren in den letzten Jahren defekt und mussten ausgetauscht werden. Vor einiger Zeit trat allerdings als weiteres Problem auf, dass diese Motoren nicht mehr hergestellt werden und daher durch andere Motoren ersetzt werden

mussten. In einem ersten Versuch wurden kleine Linear-Piezomotoren so in ein Gehäuse eingepasst, dass diese von den äußeren Abmessungen gerade den alten Inchworm-Motoren entsprachen, sodass ein Austausch letzterer 1:1 möglich war. Dieser Lösungsansatz stellte sich allerdings als nicht zielführend heraus, da an dem grundlegenden Konzept der Bühnenbewegung nichts verändert wurde, die neuen Piezomotoren aber noch anfälliger auf Scherkräfte reagierten. Zwar gingen diese Motoren nicht so schnell kaputt, wie die alten, allerdings ließen sie sich ab einer gewissen Kraft senkrecht zur Bewegungsrichtung des Motors einfach nicht mehr fahren.

Die einzige Möglichkeit die Probenbühne wieder zu reparieren und damit das Mikroskop auch wieder funktionsfähig machen zu können, bestand also in der Entwicklung und Konstruktion einer neuen Probenbühne. Diese Entwicklung vom ersten Entwurf, bis hin zum Testbetrieb, soll Inhalt dieses kurzen Kapitels sein und wird im Nachfolgenden zusammengefasst beschrieben.

A1.2 Technische Anforderungen und Konstruktion

Genau wie bei der alten Probenbühne, sollte auch bei der neuen wieder der Tilt, also die Verkipfung der Probe, und der Shift in X- und Y-Richtung unabhängig voneinander eingestellt werden können. Die Genauigkeit sollte mindestens etwas besser sein als bei der alten Bühne, deren Hysterese für den Shift etwa eine Ungenauigkeit von einigen Mikrometern hatte. Außerdem war es wichtig, dass die alten Probenhalter weiterhin verwendet werden können, da das gesamte Transfersystem der Maschine auf deren Grundlage gebaut war und eine zusätzliche Neuentwicklung eines Probenhalters den zeitlichen Rahmen gesprengt hätte. Um diese Anforderungen optimal zu erfüllen, wurde für die neue Probenbühne die abgeänderte Grundplatte der alten Bühne als Basis verwendet. Ebenfalls sollte das bewährte Prinzip des Verkippens der Probe von der alten Probenbühne übernommen werden. Dieses geschieht durch die Verschiebung des Probenhalters über eine polierte Sphäre, deren Mittelpunkt gerade auf der Probenoberfläche liegt.

Insgesamt bestand die Aufgabe also darin, auf die modifizierte Grundplatte der alten Probenbühne einen XY-Verschiebetisch zu konstruieren, auf dem wiederum

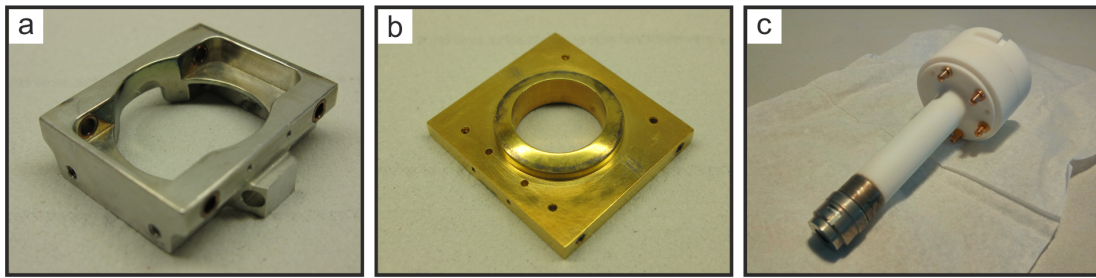


Abbildung 4.17: Drei der auch für die neue Probenbühne wiederverwendeten Komponenten der alten Bühne. (a) Zentraler Teil der alten wie neuen Bühne. Zu erkennen sind auch die vier Gleitlager, deren präzise Neuanfertigung sehr schwierig gewesen wäre. (b) Unterer Teil der polierten Sphäre, auf der die Probenhalteraufnahme gleitet um den Tilt korrigieren zu können. (c) Aufnahmevorrichtung für die eigentlichen Probenhalter. Dieses Teil ist komplett schließbar, sodass eine Weiterverwendung mit der neuen Bühne Voraussetzung war.

ein weiterer XY-Verschiebetisch montiert werden soll, der die Probenhalteraufnahme samt Sphäre für den Tilt integriert. Für die Verschiebung der vier unabhängigen Richtungen, sollten die bereits vorhandenen Piezomotoren der Firma NANOS verwendet werden. Im Folgenden werden zunächst kurz die Teile der alten Probenbühne gezeigt, welche auch im neuen Entwurf weiterhin Verwendung finden. Anschließend werden im Wesentlichen die vier neu entwickelten Bauteile gezeigt, aus denen sich schließlich der doppelte Verschiebetisch ergibt. Die technischen Zeichnungen aller neukonstruierten Bühnenteile sind im Anhang zu finden.

A1.2.1 Recycelte Komponenten

Wie bereits beschrieben, sollte die alte Grundplatte auch als Basis der neuen Probenbühne dienen. Eine Zeichnung der Grundplatte, an der nur geringfügige Modifikationen notwendig waren, befindet sich ebenfalls im Anhang. Auf der Grundplatte befinden sich Aufnahmen für zwei polierte Achsstäbe, auf denen die Bühne gleiten kann. Dieses Prinzip sollte von dem alten Bühnendesign übernommen werden. Der Abstand der beiden Achsen ist folglich fest vorgegeben und eine präzise Passgenauigkeit weiterer Teile, die auf diesen Achsstäben gleiten, ist elementar für die gesamte Funktion der Bühne. Daher ist auch für den Tilt das in Abbildung 4.17 (a) gezeigte alte Bühnenteil, das auf zwei dieser Achsstä-

be gleitet, für die neue Bühne übernommen worden. Dieses Teil bildet nun das zentrale Stück der neuen Probenbühne, sodass sämtliche neu zu entwickelnden Komponenten auf dieses Teil abgestimmt sein müssen. Abbildung 4.17 (b) zeigt das untere Teil der angesprochenen polierten Sphäre, auf der der zweite Verschiebetisch gleitet, um so den Probentilt kompensieren zu können. Als letztes Teil, das weiterhin auch für die neue Bühne Verwendung finden soll, ist in Abbildung 4.17 (c) die Aufnahme für die eigentlichen Probenhalter gezeigt. Deren genauer Aufbau soll hier nicht näher erläutert werden. Alle in der Abbildung 4.17 gezeigten Teile konnten so in die neue Probenbühne integriert werden; es waren keine weiteren Modifikationen notwendig.

A1.2.2 Neuentwickelte Komponenten

Um eine neue Probenbühne für die bereits vorhandenen Piezomotoren und mit den oben genannten Anforderungen zu bauen, mussten zunächst sechs größere Teile vollständig neu konstruiert und hergestellt werden. Für alle Bauteile wurde als Material hochreines Titan gewählt und bei der Konstruktion wurde immer darauf geachtet keine virtuellen Vakuumsacks entstehen zu lassen sowie mit Hilfe von Langlöchern etc. zu vermeiden, dass die spätere Lage der Bauteile in dem Gesamtbühnenkonzept überdefiniert ist. Im Anhang befindet sich zu jeder dieser neuen Komponenten sowohl die technische Konstruktionsskizze, als auch eine gerenderte 3D-Ansicht des Bauteils. Im einzelnen sind diese Bauteile dort wie folgt benannt: “Motorhalter”, “Motorklemme”, “X-Schlitten”, “Y-Schlitten”, “X-Tilt Zange” und “Y-Tilt Zange”. Neben den beiden ersten Komponenten, die im Wesentlichen zur Befestigung der Motoren dienen, besteht die neue Bühne hauptsächlich aus vier übereinander angeordneten Teilen, die sich entweder mit den erwähnten Achsstäben durch Gleitlager bewegen oder sogar aufeinander gleiten sollen. In Abbildung 4.18 ist eine gerenderte 3D-Ansicht der gesamten Probenbühne gezeigt, aus der dieser Sandwich-Aufbau ganz gut hervorgeht. Das unterste der vier Teile (X-Schlitten) kann sich mit den Stäben durch die Gleitlager der Grundplatte in X-Richtung bewegen. Der Antrieb erfolgt über den ersten Piezomotor, der direkt an der Grundplatte befestigt ist. Fest an diesem Schlitten befestigt ist der zweite Motor sowie das in Abbildung 4.17 (a) gezeigte zentrale Bauteil

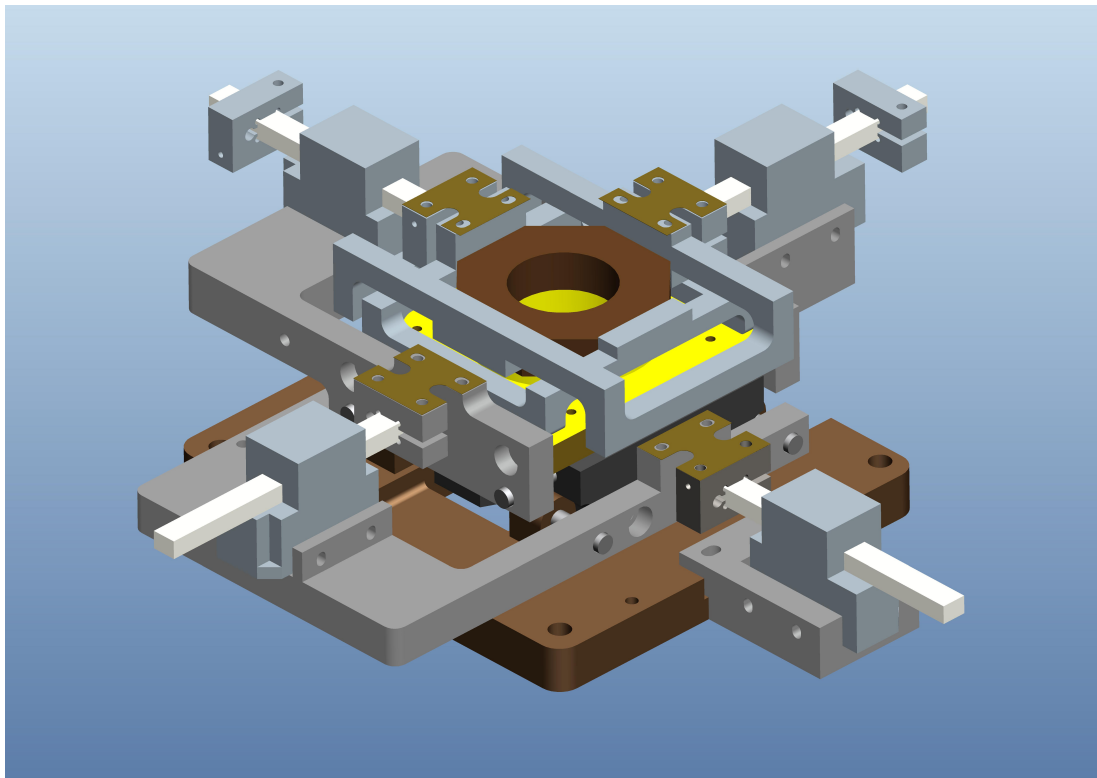


Abbildung 4.18: Gerenderte 3D-Ansicht der gesamten neu konstruierten Probenbühne. Es sind gut die vier aufeinander gesetzten Schlitten zu erkennen, die jeweils über einen Motor auf der darunter liegenden Ebene angetrieben werden. Die unteren beiden Schlitten bewegen sich mit Hilfe von Stangen durch Gleitlagern und sind für den X-Y-Shift verantwortlich. Die oberen beiden "Tilt-Zangen" gleiten übereinander und bewegen das eingeklemmte Gegenstück der Sphäre über eben diese um den X-Y-Tilt einstellen zu können.

der Bühne. Durch dessen Gleitlager kann sich wiederum der zweite (Y-) Schlitten bewegen, der über den Motor auf dem X-Schlitten angetrieben wird. Mit diesem Y-Schlitten ist schließlich der in Abbildung 4.17 (b) gezeigte Teil der Sphäre bewegen, wodurch mit diesen beiden neuen Teilen bereits eine Verschiebung der Probe in X- und Y-Richtung möglich ist. Für den Tilt sind ebenfalls auf dem Y-Schlitten die beiden letzten Motoren im Winkel von 90° zueinander befestigt, die jeweils eine der beiden "Tilt-Zangen" bewegen. Diese umschließen das Gegenstück der gezeigten Sphäre und bewegen dieses, indem sie übereinander bzw. über die Ränder der Sphärenkomponente gleiten. Somit ist es möglich auch den Tilt in X- und Y-Richtung, an jeder mit den beiden unteren Schlitten eingestellten Position, unabhängig voneinander einzustellen.

A1.3 Aufbau, Optimierung und erster Testbetrieb

Bereits der erste Zusammenbau der fertigen Komponenten zeigte vielversprechende Ergebnisse. Alle vier Schlitten ließen sich auf Anhieb fahren. Lediglich einige Flächen mussten noch nachgeschliffen oder -poliert werden um ein optimales Gleiten zu ermöglichen. Die Ansteuerung der Motoren von Außen erfolgt mit zwei Joysticks der Firma NANOS. Diese können zwar die Positionen der einzelnen Motoren ermitteln, allerdings nur solange sie eingeschaltet sind. Um die Schlitten im Zweifel nicht zu weit zu fahren und damit eine Beschädigung des Probenhalters zu riskieren, ist es folglich notwendig für jede Bewegungsrichtung zwei Endabschalter zu ergänzen. Abbildung 4.20 (a) zeigt exemplarisch den entwickelten Endabschalter für den X-Schlitten. Am Schlitten selber befinden sich zwei mit Keramik isolierte Kontakte, die bei entsprechender Position des Schlittens über einen dritten, festen Kontakt am Bauteil darunter geerdet werden.

Nach weiterer Optimierung der Endabschalterpositionen konnte die gesamte Bühne schließlich das erste Mal in der Vakuumkammer über der Objektivlinse eingepasst werden. In Abbildung 4.19 ist ein Foto der fertig zusammengesetzten Probenbühne in der Kammer gezeigt. Der Aufnahmewinkel entspricht dabei im Wesentlichen dem in der gerenderten 3D-Ansicht im letzten Abschnitt. Zusätzlich zu den dort diskutierten Hauptkomponenten sind auf dem Foto auch noch die erwähnten Endabschalter, sowie die gesamte Verkabelung zu erkennen. Fertig eingebaut wurde schließlich noch erkannt, dass die Keramiken der Piezomotoren je nach Bühnenposition bei Betrieb eines Verdampfers mitbedampft werden könnte. Damit wäre eine einwandfreie Funktion auf Dauer nicht gewährleistet. Als letzte Optimierung wurde daher noch ein dünnes Metallblech konstruiert, welches unterhalb der Probenbühne montiert werden konnte.

Der erste Testbetrieb der Mechanik im Vakuum verlief ebenfalls vielversprechend und auch die 15 kV Hochspannung zwischen Probe und Objektivlinse ließ sich nach diversen Verbesserungen der Isolierungen problemlos anlegen. Der erste richtige Test erfolgte mit einer Si(111)-Probe und zunächst im PEEM-Modus des Mikroskops. Bereits während des ersten Alignments zeigten sich die Vorteile dieses motorisierten Bühnenkonzepts im Vergleich zu dem im Abschnitt 2.2 vorgestell-

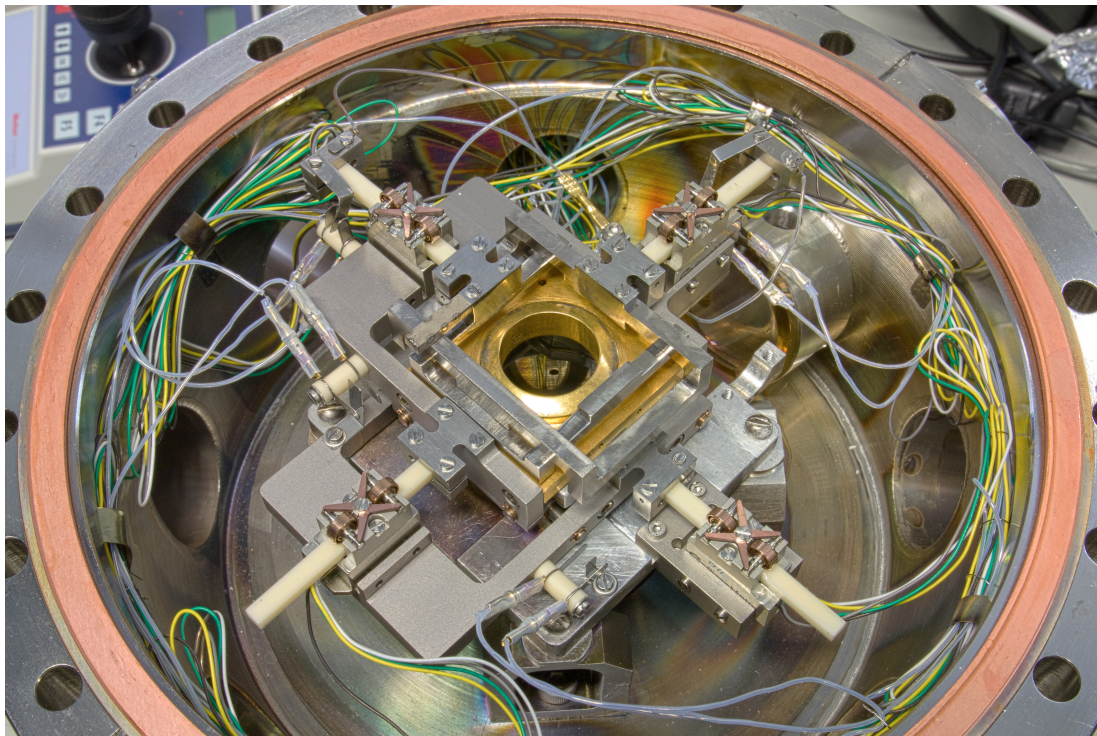


Abbildung 4.19: Foto der fertig zusammengesetzten neuen Probenbühne. Der Blickwinkel entspricht gerade dem in der gerenderten 3D-Ansicht im letzten Abschnitt. Zusätzlich sind hier noch gut die Endabschalter und die gesamte Verkabelung der Bühne zu erkennen.

ten Mikroskop, mit dem alle in dieser Arbeit gezeigten Experimente durchgeführt wurden. Insbesondere die Korrektur des Probentilts funktionierte bestens und ist im direkten Vergleich ein wahrer Komfort- und Präzisionsgewinn. In Abbildung 4.20 (b) ist eines der ersten PEEM Bilder gezeigt, das unter Verwendung der neu konstruierten Probenbühne entstanden ist. Da der Abstand zwischen Objektivlinse und Probe noch derselbe ist, wie mit der alten Bühne, kann direkt die Größe des Gesichtsfeldes angegeben werden. Damit war es ebenfalls möglich, relativ einfach die Genauigkeit der neuen Probenbühne zu bestimmen. Selbst bei einer Verschiebung von mehreren hundert Mikrometern in X- bzw. Y-Richtung beträgt der Versatz in die jeweils andere Richtung beim Anfahren des Ausgangspunktes (unidirektionale Reproduzierbarkeit) weniger als $2\text{ }\mu\text{m}$. Damit ist die Anforderung, die an die Genauigkeit der neuen Probenbühne gestellt wurde sogar noch übertroffen worden.

Leider traten im folgenden Testbetrieb und während des ersten LEEM-Betriebs vermehrt Probleme an dem Mikroskop selbst auf. So fielen mehrfach wasserge-

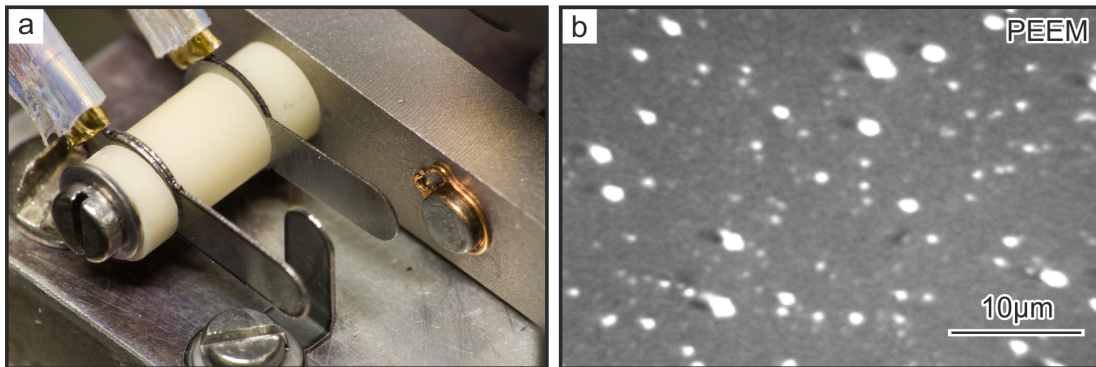


Abbildung 4.20: (a) Detailaufnahme des neu entwickelten Endabschalters. Zwei keramisch isolierte Kontakte werden an den entsprechenden Endpositionen des Schlittens über einen dritten, festen Kontakt am Bauteil darunter geerdet. (b) Eines der ersten PEEM-Bilder unter Verwendung der neuen Probenbühne. Die unidirektionale Reproduzierbarkeit einer Position ist für die neue Bühne auf weniger als $2\text{ }\mu\text{m}$ bestimmt worden.

kühlte und daher vergossene Elektronenlinsen aus und mussten teilweise manuell neu gewickelt werden. Zudem gab es Defekte an dem Objektivstigmator, an einigen der alten Präzisionsnetzteile und an der Hochspannungsversorgung. Diese konnten insgesamt immer so behoben werden, dass zumindest ein PEEM-Betrieb des Mikroskop möglich ist. Ein einwandfreier Betrieb im LEEM-Modus konnte aus den unten genannten Gründen jedoch nicht erreicht werden.

A1.4 Zusammenfassung und Ausblick

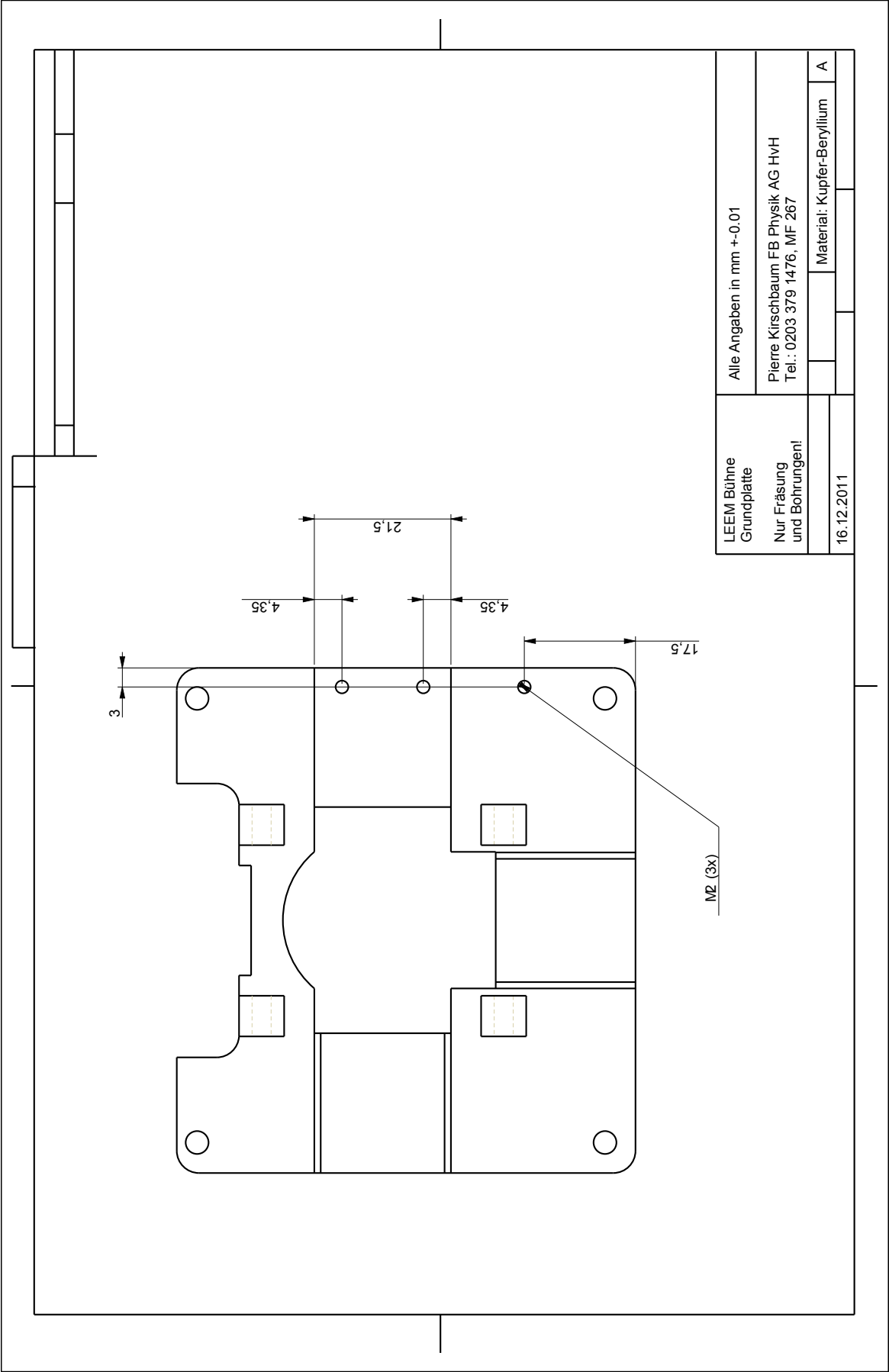
In diesem Teil des Anhangs wurde im Wesentlichen die Konstruktion und der Aufbau einer neuen LEEM Probenbühne diskutiert. Dabei sind grundlegende Anforderungen erläutert und die entsprechend dieser Anforderungen neu konstruierten Bühnenkomponenten beschrieben worden. Zusammenfassend kann festgehalten werden, dass die neue Probenbühnenkonstruktion, trotz ihrer Komplexität, bereits bei den ersten Probeläufen wie geplant funktionierte. Die Präzision hat sich im Vergleich zur alten Bühne deutlich verbessert und ein etwaiges Verkanten der Schlitten ist nicht mehr zu beobachten. Anschließende Testläufe im LEEM-Modus des Mikroskops verliefen hingegen aufgrund mehrerer Defekte nicht so erfolgreich.

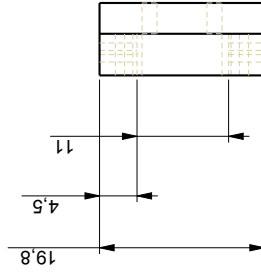
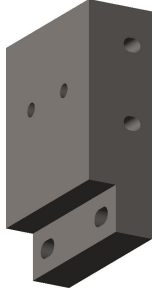
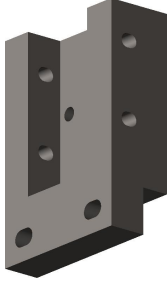
Dabei konnte das Mikroskop allerdings immer soweit in Stand gehalten werden, dass zumindest im PEEM-Modus gearbeitet werden konnte.

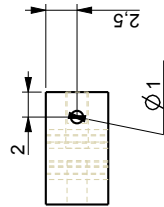
Um das Mikroskop wieder voll einsatzfähig zu machen, hätten nicht nur ausgefallene Komponenten repariert, sondern in Folge dessen auch der gesamte Elektronenstrahl mechanisch Grundjustiert werden müssen. Eine solche Wiederinstandsetzung hätte zum einen enorm viel Zeit gekostet. Zum anderen sind parallel zu den ersten Bühnentest bereits erste Experimente zur Hochtemperaturkinetik der Si(001)-Oberfläche am beschriebenen ELMITEC-LEEM durchgeführt worden. Diese in der vorliegenden Arbeit gezeigten Experimente setzen eine enorm hohe thermische Stabilität des Mikroskops bis über (1200°C) voraus. Diese ist in Kombination mit einer guten Auflösung bei dem alten IBM-LEEM nicht gegeben. Überhaupt war für einige der gezeigten Experimente das deutlich bessere Auflösungsvermögen des ELMITEC-Mikroskops unerlässlich. Aus diesen Gründen wurde eine weitere Instandsetzung des alten Mikroskops nicht weiter verfolgt und die in dieser Arbeit gezeigten Experimente ausnahmslos am ELMITEC-Gerät durchgeführt.

A1.5 Technische Zeichnungen der neu konstruierten Komponenten

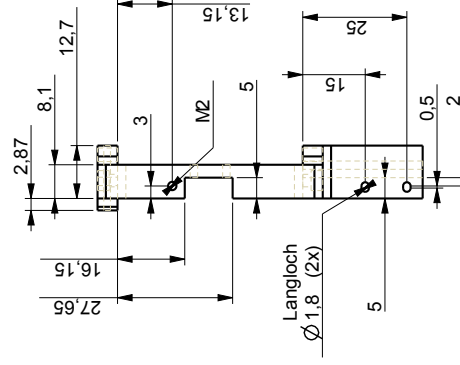
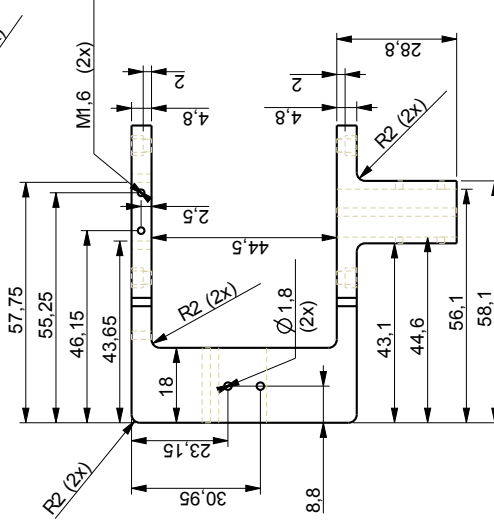
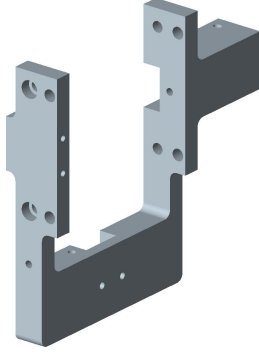
Auf den folgenden Seiten finden sich zusätzlich noch die technischen Konstruktionszeichnung der in Abschnitt A1.2 diskutierten neuen Komponenten für die LEEM-Probenbühne. Damit sind zum einen diese Zeichnungen nicht nur für die "Nachwelt" erhalten und leicht wieder aufzufinden, sondern es wird zum anderen auch gut die Komplexität dieser Konstruktion deutlich, wodurch wiederum klar wird, wie zeitintensiv die gesamte Entwicklung gewesen ist.



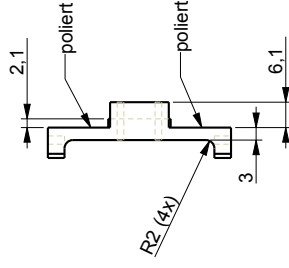
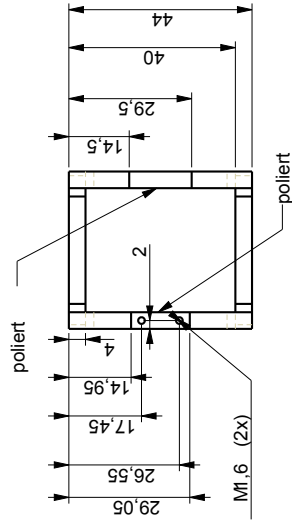
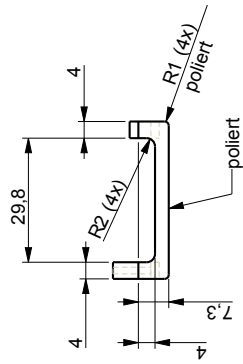
[illegible]



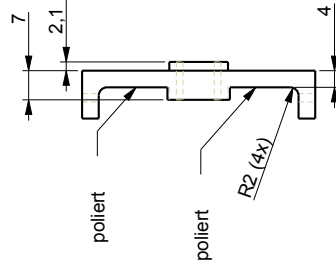
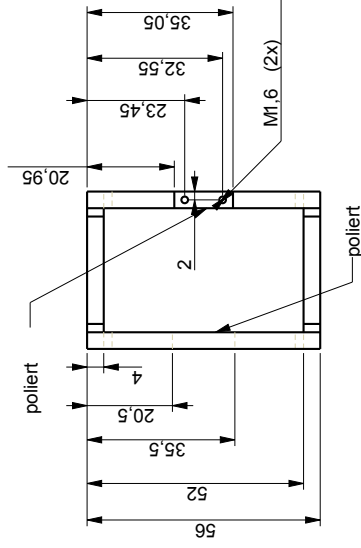
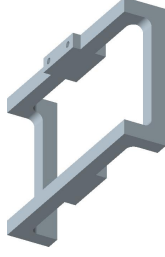
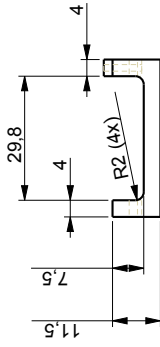
--	--	--	--



LEEM Bühne Y-Schlitten	Alle Angaben in mm +0.01		
Anzahl: 1	Pierre Kirschbaum FB Physik AG HWH Tel.: 0203 379 1476, MF 267		
			Material: Titan 3.7035
16.12.2011			A



LEEM Bühne X-Tilt Zange	Alle Angaben in mm +0.01			
	Pierre Kirschbaum FP Physik AG HvH Tel.: 0203 379 1476, MF 267			
Anzahl: 1	Material: Titan 3.7035		A	
16.12.2011				



LEEM Bühne Y-Tilt Zange	Alle Angaben in mm ± 0.01			
Anzahl: 1	Pierre Kirschbaum FB Physik AB HvH Tel.: 0203 379 1476, MF 267			
			Material: Titan 3.7035	A
16.12.2011				

A2 Liste der Konferenzbeiträge

Nachfolgend eine Liste in chronologischer Reihenfolge von Beiträgen zu internationalen Konferenzen, die ich entweder persönlich präsentiert habe oder an denen ich beteiligt gewesen bin. Zusätzlich zu den aufgelisteten Konferenzbeiträgen durfte ich auf zahlreichen nationalen und internationalen Workshops des Sonderforschungsbereichs 616 “Energiedissipation an Oberflächen” die Ergebnisse und Fortschritte unserer Forschung präsentieren.

- DPG Spring Meeting 2016, Regensburg, Germany
P. Kirschbaum, L. Brendel, K. R. Roos, M. Horn-von Hoegen, and F.-J. Meyer zu Heringdorf
Decay of isolated Hills and Saddles on Si(001) studied by LEEM
- LEEM-PEEM 9 Conference 2014, Berlin, Germany
P. Kirschbaum, M. Horn-von Hoegen, and F.-J. Meyer zu Heringdorf
High Temperature Desorption Dynamics on Si(001) studied by LEEM
- LEEM-PEEM 8 Conference 2012, Hong Kong, China
P. Kirschbaum, N. M. Buckanie, S. Sindermann, and F.-J. Meyer zu Heringdorf
Surface Plasmon Polaritons on Self-Assembled Ag(111) Islands Studied by Nonlinear Photoemission Microscopy
- DPG Spring Meeting 2012, Berlin, Germany
P. Kahl, S. Wall, N. Buckanie, **P. Kirschbaum**, S. Sindermann, M. Horn-von Hoegen, and F.-J. Meyer zu Heringdorf
Interaction of light and surface plasmon polaritons in Ag islands studied by nonlinear photoemission microscopy

-
- 28th European Conference on Surface Science 2011, Wroclaw, Poland
P. Kirschbaum, P. Kahl, S. Sindermann, N.M. Buckanie, and F.-J. Meyer zu Heringdorf
Impact of C_{60} Adsorption on Surface Plasmon Polaritons in self-assembled Ag islands
 - DPG Spring Meeting 2011, Dresden, Germany
N. M. Buckanie, **P. Kirschbaum**, S. Sindermann, M. Horn-von Hoegen, and F.-J. Meyer zu Heringdorf
Photoemission microscopy on surface plasmon polaritons in Ag islands
 - 17th International Microscopy Congress 2010, Rio de Janeiro, Brazil
F.-J. Meyer zu Heringdorf, S. Sindermann, **P. Kirschbaum**, N.M. Buckanie
Imaging of Surfaces Plasmon Polariton Waves in Two Photon Photoemission Microscopy
 - LEEM-PEEM 7 Conference 2010, New York City, USA
N.M. Buckanie, **P. Kirschbaum**, S. Sindermann, and F.-J. Meyer zu Heringdorf
Interaction of Surface Plasmon Polaritons with Ag Islands as Imaged in Two Photon Photoemission PEEM
 - DPG Spring Meeting 2010, Regensburg, Germany
P. Kirschbaum, N.M. Buckanie, M. Horn-von Hoegen, and F.-J. Meyer zu Heringdorf
Influence of C_{60} Adsorption on Surface Plasmon Polariton Properties
 - 2nd National Non-Linear PEEM Workshop 2009, Duisburg, Germany
N.M. Buckanie, N. Raß, **P. Kirschbaum**, F.-J. Meyer zu Heringdorf
Zeitaufgelöstes PEEM an Silberinseln

A3 Publikationen

Im Nachfolgenden findet sich eine Liste von Publikationen, an denen ich im Rahmen meiner Promotion beteiligt war. Auf den folgenden Seiten finden sich des weiteren Reprints sämtlicher dieser Publikationen.

- *Decay of isolated Hills and Saddles on Si(001)*
P. Kirschbaum, L. Brendel, K.R. Roos, M. Horn-von Hoegen, and F.-J. Meyer zu Heringdorf
Material Research Express (2016) 3:085011
- *Interaction of Light and Surface Plasmon Polaritons in Ag Islands Studied by Nonlinear Photoemission Microscopy*
N.M. Buckanie, **P. Kirschbaum**, S. Sindermann, and F.-J. Meyer zu Heringdorf
Ultramicroscopy (2013) 130, 49-53
- *Impact of C_{60} Adsorption on Surface Plasmon Polaritons on Self-Assembled Ag(111) Islands on Si(111)*
P. Kirschbaum, N.M. Buckanie, and F.-J. Meyer zu Heringdorf
Plasmonic (2012) 7, 229-233
- *Imaging of Surfaces Plasmon Polariton Waves in Two Photon Photoemission Microscopy*
F.-J. Meyer zu Heringdorf, S. Sindermann, **P. Kirschbaum**, N.M. Buckanie
IMC17 Conference Proceedings (2010) 11515